

FACULTE MIXTE DE MEDECINE ET DE PHARMACIE
DE LYON

Année 1964 - N° 212

TITRE DE LA THESE

APPLICATION DE LA SPECTROMETRIE GAMMA
A LA MESURE DIRECTE DES TENEURS
EN RADON ET EN RADIUM
DES EAUX THERMALES

THESE

présentée

à la Faculté Mixte de Médecine et de Pharmacie de LYON

et soutenue publiquement le 18 Décembre 1964

pour obtenir le grade de Docteur en Médecine

par

GIMBERGUES Henry

Ancien élève de l'Ecole du Service de Santé Militaire

né le 23 Octobre 1937

à POITIERS (Vienne)

FACULTE MIXTE DE MEDECINE ET DE PHARMACIE
DE LYON

Année 1964 - N° 242

TITRE DE LA THESE

APPLICATION DE LA SPECTROMETRIE GAMMA
A LA MESURE DIRECTE DES TENEURS
EN RADON ET EN RADIUM
DES EAUX THERMALES

T H E S E

présentée

à la Faculté Mixte de Médecine et de Pharmacie de LYON

et soutenue publiquement le 18 Décembre 1964

pour obtenir le grade de Docteur en Médecine

par

GIMBERGUES Henry

Ancien élève de l'Ecole du Service de Santé Militaire

né le 23 Octobre 1937

à POITIERS (Vienne)



Digitized by the Internet Archive
in 2026



https://archive.org/details/IA41554209_0015

PERSONNEL DE LA FACULTE

Doyens Honoraires :

M. J. LEPINE - Membre de l'Institut

M. H. HERMANN - Correspondant de l'Institut

Doyen : M. J.F. CIER

Assesseurs : MM. M. LEVRAT
L. REVOL

PROFESSEURS HONORAIRES

MM. COLLET, GUIART, LEPINE, PATEL, TRILLAT, MOURIQUAND, MAZEL, GARIN, GATE, MARTIN, GABRIELLE,
SANTY, DUCLOS, GUILLEMINET, HERMANN, ROCHET, POLOSSON.

PROFESSEURS

MM. CIBERT	Clinique urologique
PONTHUS (détaché à Beyrouth)	Physique biologique
DECHAUME	Clinique neuro-psychiatrique et d'hygiène mentale
CHAMBON	Chimie organique et toxicologie
WERTHEIMER	Clinique chirurgicale B
PAUPERT-RAVAULT	Clinique médicale B
FROMENT	Clinique et prophylaxie cardio-vasculaires
CROIZAT	Clinique médicale C
ENSELME	Chimie biologique et médicale
MALLET-GUY	Clinique chirurgicale A
REVOL	Pharmacie galénique
PIGEAUD	Clinique obstétricale
BOURRET	Médecine du travail
LEVRAT	Clinique médicale A
SOHIER	Hygiène et action sanitaire et sociale
NETIEN	Botanique et cryptogamie
BERTRAND	Clinique chirurgicale C
BADINAND	Chimie analytique pharmaceutique
DREVON	Pharmacie chimique et pharmacologie
ROCHE	Médecine légale et déontologie
COUDERT	Parasitologie et pathologie exotique
MOUNIER-KUHN	Clinique d'Oto-rhino-laryngologie et d'audio phonologie
PAUFIQUE	Clinique ophtalmologique
THIERS	Clinique de dermatologie, syphiligraphie et allergologie

MM. BRUN	Clinique de pneumo-phtisiologie
CREYSSEL	Clinique chirurgicale orthopédique et traumatologique
DARGENT	Clinique carcinologique
GUICHARD	Anatomie pathologique
GIRARD Paul	Pathologie générale et expérimentale
LATARJET	Anatomie
PEYCELON	Pathologie chirurgicale
GIRARD Marcel	Clinique médicale D
VACHON	Pathologie médicale
GALY	Physio-pathologie des voies respiratoires
PAPILLON	Radiologie
JEUNE	Clinique médicale infantile et hygiène du 1er âge
GONIN	Hydrologie thérapeutique, climatologie et écologie sociale
MONNET	Bactériologie
BANSSILLON	Physiologie et pathologie obstétricales
CHATONNET	Physiologie B
GUINET	Clinique endocrinologique
TRILLAT	Clinique de chirurgie orthopédique
FREIDEL	Clinique stomatologique
MARION Joseph	Clinique de chirurgie et d'orthopédie infantiles
DORCHE	Matière médicale et législation pharmaceutique
DUMONT Louis	Histologie et embryologie
PERROT	Chimie
CIER J. F.	Physiologie A
PERRIN J.	Thérapeutique chirurgicale et chirurgie opératoire
MICHAUD Pierre	Clinique de chirurgie cardiaque
X.....	Clinique des maladies infectieuses
X.....	Biologie médicale et pharmacodynamie
X.....	Clinique gynécologique
X.....	Thérapeutique

PROFESSEURS A TITRE PERSONNEL

MM. BERGER	Physique nucléaire appliquée à la médecine
BERTOYE	Bactériologie
MANSUY	Neuro-chirurgie
COLLET	Chimie générale et pharmaceutique
SARROUY	Clinique de pédiatrie et puériculture
LACROIX	Hygiène et climatologie
LIARAS	Clinique chirurgicale propédeutique
LECUIRE	Neuro-chirurgie
REVOL	Médecine générale
GOINARD	Thérapeutique chirurgicale
CIER André	Pharmacie chimique et pharmacologie
PONT Maurice	Médecine générale

PROFESSEURS SANS CHAIRE

MM. ROMAN
FEROLDI
MORET
ODDOUX
de SOLLIERS
DESPIERRES
TOLOT
GARIN

Parasitologie
Anatomie pathologique
Physique biologique
Botanique et cryptogamie
Chimie analytique
Médecine générale
Médecine du travail
Parasitologie

MAITRES DE CONFERENCES - AGREGES TITULAIRES

MM. CREYSSSEL Roger
THIVOLET
PINET
GUYOTAT
DESCOTES
JOUVET
PEYRIN
TOMMASI
BUFFARD
LEJEUNE
de MOURGUES F.
NAUSSAC
REBOUILLAT
ROMAGNY
DELAHAYE
DELEUZE
GIRAUD
MICHEL
FRANCOIS
MICHOUlier
COLOMB
LAMBERT
FRIES
GILLY
ROBERT
BOUCHET
BETHENOD
GERMAIN
LARBRE
SOUSTELLE
VIALA
VINCENT
KALB

Chimie biologique
Hygiène
Electro-Radiologie
Neuro-psychiatrie
Chirurgie générale
Pathologie expérimentale
Physique biologique
Anatomie pathologique
Electro-radiologie
Médecine générale et thérapeutique
Stomatologie
Maladies infectieuses
Chirurgie générale
Pédiatrie
Médecine générale
Anesthésiologie
Electro-radiologie diagnostic et thérapeutique
Anesthésiologie
Pédiatrie et puériculture
Chirurgie générale
Dermatologie
Médecine générale
Médecine générale
Pédiatrie
Médecine générale
Anatomie
Pédiatrie
Immunologie, sérologie, hématologie
Pédiatrie
Chirurgie générale
Médecine générale
Bactériologie, parasitologie, virologie
Pneumo-phtisiologie

MAITRES DE CONFERENCES - AGREGES STAGIAIRES

MM. FAVRE - GILLY	Hématologie
GIROD	Histologie et embryologie
GRAS	Chimie biologique
MALLEIN	Chimie analytique
RIFFAT	Hygiène
FAUCON	Biologie médicale et pharmacodynamie
FLANDROIS	Physiologie
VIALIER - RAYNARD	Bactériologie
ROLLET	Pharmacie galénique

AGREGES EN EXERCICE

MM. BONAMOUR	Ophtalmologie
COLIN	Médecine légale
de MOURGUES Georges	Chirurgie générale
DEVIC	Médecine générale
DUMONT Martial	Obstétrique
DURAND	Urologie
FRANCILLON	Chirurgie générale
SAUBIER	Chirurgie générale
SCHOTT	Neuro-psychiatrie
ALLEGRE	Neuro-chirurgie
CHASSARD	Electro-radiologie
FAYSSE	Orthopédie
GAILLARD	Oto-rhino-laryngologie
GARDE	Médecine générale
HUGONNIER	Ophtalmologie
MARET	Chirurgie générale
MORNEX	Médecine générale
NORMAND	Médecine générale
PERRIN André	Médecine générale
DUMAS	Stomatologie
GARMIER	Obstétrique
NOEL	Médecine générale
SCHNEPP	Orthopédie

Examineurs de la Thèse :

Président : M. le Professeur M. BERGER

Assesseurs : MM. A. CIER
R. MORET
FAUCON

APPLICATION DE LA SPECTROMETRIE GAMMA A LA MESURE DIRECTE
DES TENEURS EN RADON ET EN RADIUM DES EAUX THERMALES.

(Travail du Laboratoire de Physique Biologique de
La Faculté de Médecine de LYON).

A MA FEMME.

A NOTRE FILLE CLAIRE-MICHELE.

A MON PERE ET A MA MERE.

Avec ma filiale affection.

A MA SOEUR SUZANNE.

A LA MEMOIRE DE MA BELLE-MERE.

A MON BEAU PERE.

A MES BELLES SOEURS MICHELE ET MERCEDES.

A MES BEAUX FRERES JEAN-LOUIS, RAYMOND, JEAN-FRANCOIS.

A MES PARENTS.

A TOUS MES AMIS.

A NOTRE PRESIDENT DE THESE,

Monsieur le Professeur M. BERGER.

Il nous a aimablement accueilli dans son laboratoire, voilà quatre ans.

Tout au long de l'élaboration de ce travail auquel il tenait particulièrement, il n'a cessé de nous prodiguer conseils et encouragements avec la bienveillance et la simplicité qui lui sont coutumières.

Il nous fait aujourd'hui l'honneur de présider notre jury de thèse ; qu'il veuille bien trouver ici l'expression de notre profonde gratitude et de notre respectueux attachement.

A NOS JUGES :

Monsieur le Professeur A. CIER.

Nous le remercions de l'honneur qu'il nous fait en jugeant ce travail.

Monsieur le Professeur R. MORET.

Depuis notre entrée au Laboratoire, il a bien voulu nous associer à ses travaux.

Patiemment, avec la gentillesse qui lui est propre, il nous a appris à aimer le travail expérimental, toujours prêt à faire bénéficier notre inexpérience de l'étendue de ses connaissances scientifiques. Il ne s'est pas passé de jours sans que ses conseils, son talent d'expérimentateur, ne servent à faire progresser notre travail.

Nous voudrions simplement lui dire notre reconnaissance profonde et notre affectueux attachement.

Monsieur le Professeur Agrégé FAUCON.

Nous le remercions de l'honneur qu'il nous fait en acceptant de nous juger.

A Monsieur Ch.A. BIZOLLON.

Il nous a guidé pas à pas dans la réalisation de ce travail dont il est l'instigateur. Il a su nous faire partager son enthousiasme et nous inculquer les principes du travail de recherche.

Qu'il veuille croire à notre attachement sincère et affectueux.

A Monsieur le Médecin Général Inspecteur BORON
Professeur Agrégé du Val de Grace
Directeur de l'Ecole du Service de Santé Militaire et de
l'Hopital Militaire d'Instruction Des Genettes.

A Monsieur le Médecin Colonel GROSSETETE.
Bactériologiste des Hopitaux des Armées
Médecin Chef de l'Hopital Militaire d'Instruction Des Genettes.

A Monsieur le Médecin Lieutenant Colonel A. COUTURE.
Electroradiologiste des Hopitaux des Armées
Chef du Service de Radiologie de
l'Hopital Militaire d'Instruction Des Genettes.

Au cours des mois passés dans son
service, nous avons apprécié la grande amabilité
dont il a fait preuve à notre égard.
Il nous a initié à la Radiologie, qu'il nous a
appris à aimer.

Qu'il trouve ici l'expression de
notre gratitude et de notre admiration.

A nos Maîtres de la Faculté de Médecine de LYON,
des Hopitaux Civils,
de l'Hopital Militaire d'Instruction Des Genettes,

en particulier,

A Monsieur le Médecin Lieutenant-Colonel PAPET
Electroradiologiste des Hopitaux des Armées.

A Monsieur le Médecin Commandant ROUBINET
Electroradiologiste des Hopitaux des Armées.

A Monsieur le Médecin Commandant QUINARD
Electroradiologiste des Hopitaux des Armées.

A Messieurs les Médecins-Capitaines :
BOCQUET, BLANC, PICHAT, MOURET, BLANCHON.

A tous les membres du Laboratoire de Physique Biologique et
Service de Radiologie de l'Hopital Militaire d'Instruction Des Genettes.

INTRODUCTION

L'irradiation naturelle de l'homme est due en grande partie, à la présence d'éléments radioactifs dans les roches cristallines de l'écorce terrestre. Les roches sédimentaires, les sols, qui proviennent pour une grande part de l'altération des formations primaires, se chargent donc en radio-éléments.

Les eaux qui lessivent, par des processus divers, toutes ces formations, acquièrent, de ce fait, un certain degré de radioactivité.

Ceci est réalisé au maximum par les eaux therminérales qui jaillissent, pour la plupart, au sein des massifs primaires.

La radioactivité des eaux est importante à connaître, car l'utilisation de celles-ci, par l'homme, dans son alimentation, en fait un moyen de contamination interne très commun.

De nos jours, l'eau de boisson est, de plus en plus, une eau minérale recueillie à la source. Le seul danger est par conséquent représenté par les éléments naturels. Le contrôle de la radioactivité de ces eaux est très important, car souvent les sources sont situées dans les massifs primaires. fig. (1). Les éléments naturels étant seuls en cause, le problème se ramène au dosage du Radium et du Radon.

La Commission Internationale de protection contre les radiations Ionisantes a déterminé les Concentrations Maximales Admissibles pour les Populations (C.M.A.P.), en radioéléments

- 2 -

naturels et artificiels des eaux.

En France, les pouvoirs publics ont confié à certains organismes, notamment le Service Central de Protection contre les Radiations Ionisantes, le contrôle des eaux de surface. Cet organisme possède un laboratoire régional rattaché à celui de Physique Biologique à la Faculté de Médecine de LYON.

Dans le cadre des activités de recherches de ce laboratoire, nous avons essayé de mettre au point une méthode de dosage du Radium et du Radon.

De nombreuses techniques existent ; en les étudiant nous verrons qu'elles sont précises et sensibles, mais aussi, longues, nécessitant un personnel spécialisé et un matériel complexe ; ceci rend leur utilisation difficile pour un contrôle permanent.

Par notre travail, nous avons essayé de mettre au point un procédé se prêtant bien à des mesures de routine.

Nous avons bénéficié du travail de Ch.A. BIZOLLON, sur l'analyse qualitative et quantitative, par spectrométrie γ de traces de radioéléments dissous dans l'eau.

Les caractéristiques de cette méthode sont :

- La possibilité d'identifier, de doser la plupart des radioéléments à des concentrations égales ou inférieures aux C.M.A.P.

- L'absence de traitement physique ou chimique de l'eau.

Notre exposé se compose de deux parties :

La première rappelle les propriétés du Radium et des éléments de sa famille, et résume les techniques de dosage.

La deuxième expose nos travaux personnels sur l'application de la spectrométrie γ à la mesure directe de la teneur en Radium et en Radon des eaux ; cette méthode a été mise en oeuvre sur les eaux thermales de ROYAT.

=====

PREMIERE PARTIE

La connaissance des propriétés chimiques, physiques, radioactives des éléments de la famille du Radium est indispensable pour comprendre les principes sur lesquels reposent les techniques de dosage.

Nous allons les rappeler, pour ensuite étudier les différentes méthodes de dosage du Radium et du Radon.

=====

TABEAU: 1

Z Numero atomique

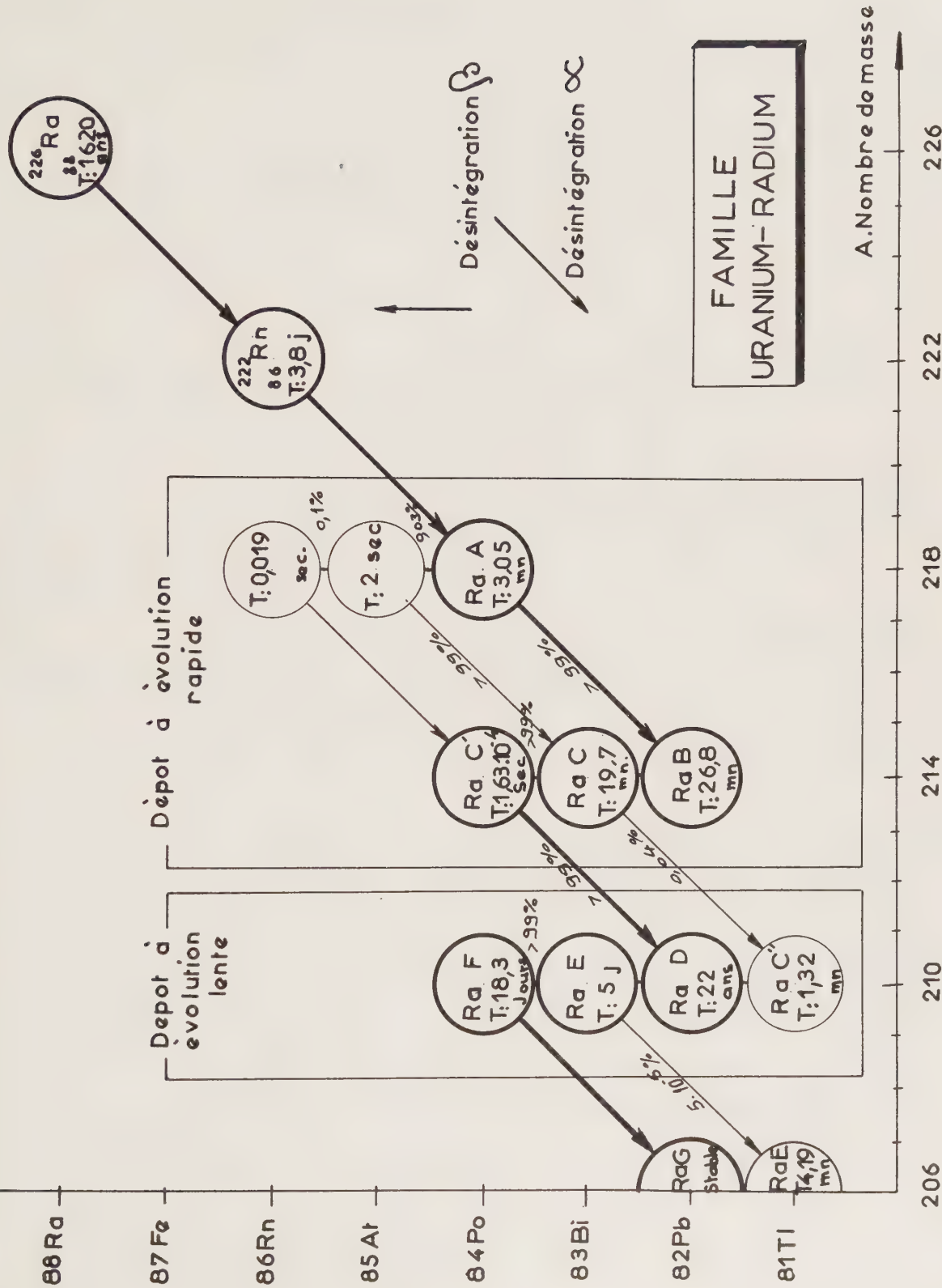


Tableau . 2

CHAPITRE I

FAMILLE DU RADIUM

=====

I - LES ELEMENTS DE LA FAMILLE DU RADIUM

Ces éléments font, en réalité, partie de la famille de l'Uranium, mais nous n'étudions que le Radium et ses descendants, car eux seuls nous intéressent pratiquement.

Le tableau (1) montre comment la désintégration d'un élément conduit à son descendant.

Pour le construire, nous avons porté en abscisse le nombre de masse A de l'élément, en ordonné le numéro atomique Z.

Par désintégration α , le déplacement a lieu obliquement de droite à gauche ; par désintégration β il a lieu verticalement.

Quand un embranchement radioactif existe, il est noté dans ce tableau, ainsi que les % respectifs des désintégrations des deux types.

On remarque que ces coefficients sont tels, qu'en pratique, seuls les éléments en trait gras sont importants à connaître.

II - PROPRIETES DES ELEMENTS

Le tableau (2) indique pour chaque élément de la

famille, la période, les rayonnements émis avec les % respectifs, le nombre de photons γ d'énergie déterminée, émis par désintégration.

Ces renseignements sont extraits du RADIATION HYGIENE HANDBOOK de H. BLATZ, référence qui rassemble les travaux de N.A. HALLDEN, J.M. HOLLANDER, I. PERLMAN, G.T. SEABORG.

1. - Le Radium

=====

Cet élément est un alcalino-terreux. Il a été isolé pour la première fois par Pierre et Marie CURIE, d'un minerai d'oxyde d'Urane, la Pechblende, en 1898.

Ses propriétés chimiques sont analogues à celles des autres éléments du groupe chimique auquel il appartient. Les chlorures et les bromures de Radium sont solubles dans l'eau ; les carbonates et les sulfates sont peu ou pas solubles dans ce solvant.

Le Radium se désintègre en émettant des particules α ; 94,30 % ont une Energie de 4,77 Mev, 5,7 % 4,589 Mev. Il émet des photons γ de 0,186 Mev. T.P. KOHMAN précise, à partir des résultats publiés à ce sujet, l'Energie et les % respectifs des différents rayons γ . Pour une désintégration de Radium, il y a 0,030 photons γ de 0,186 Mev émis.

2. - Le Radon

=====

C'est un gaz rare, homologue supérieur du Xénon. Il possède certaines propriétés très caractéristiques sur lesquelles nous devons insister.

TABLEAU N° 2

NOM	ISOTOPE	PERIODE	ALPHA Energie Abond.	BETA Energie Abond.	GAMMA Energie en M.e.v	Abondance	NOMBRE DE Photon/désintégration
Ra Radium	$^{226}_{88}\text{Ra}$	1622 ans	4,77 Mev 4,59 Mev 94,3 % 5,7 %		0,186	$\alpha/\gamma \approx 0,5$	0,030
Rn Radon	$^{222}_{86}\text{Rn}$	3,825 jours	5,49 Mev				
Ra A	$^{218}_{84}\text{Po}$	3,05 minutes	5,98 Mev				
Ra B	$^{214}_{82}\text{Pb}$	24,8 minutes		0,65 Mev 44 %	$\gamma_1 = 0,053$ $\gamma_2 = 0,241$ $\gamma_3 = 0,257$ $\gamma_4 = 0,294$ $\gamma_5 = 0,350$	$\gamma_2/\gamma_4/\gamma_5$ $\approx$ de	$\gamma_1 = 0,016$ $\gamma_2 = 0,071$ $\gamma_3 = 0,002$ $\gamma_4 = 0,200$ $\gamma_5 = 0,360$
				0,72 Mev 56 %		0,2/0,55/1,0	
Ra C	$^{214}_{83}\text{Bi}$	19,7 minutes	0,04 % de désintégration de ce type	plus de 99 % de désintégration de ce type	$\gamma_1 = 0,609$ $\gamma_2 = 0,766$ $\gamma_3 = 0,933$ $\gamma_4 = 1,120$ $\gamma_5 = 1,238$ $\gamma_6 = 1,379$ $\gamma_7 = 1,520$ $\gamma_8 = 1,761$ $\gamma_9 = 1,820$ $\gamma_{10} = 2,200$ $\gamma_{11} = 2,420$	$\gamma_1/\gamma_2/\gamma_3/\gamma_4/$ $\gamma_5/\gamma_6/\gamma_7/\gamma_8/$ $\gamma_9/\gamma_{10}/\gamma_{11} \approx$ de	$\gamma_6 = 0,046$ $\gamma_7 = 0,027$ $\gamma_8 = 0,0160$ $\gamma_9 = 0,018$ $\gamma_{10} = 0,063$ $\gamma_{11} = 0,0260$
			45 %	3,17 Mev 23 %		9/1,3/1,1/2,6 1,0/0,9/0,7/3,2 0,2/1,00/0,5	
			55 %	1,65 Mev 77 %			
			99,8 % 9,069 Mev 0,002 %				
			7,68 Mev				
Ra C'	$^{214}_{84}\text{Po}$	$1,63 \cdot 10^{-4}$ Sec					
Ra D	$^{210}_{82}\text{Pb}$	22 ans		0,018 Mev	0,0465	$\alpha/\gamma \approx 23$	0,045
Ra E	$^{210}_{83}\text{Bi}$	5 jours		1,17 Mev			
Ra F	$^{210}_{84}\text{Po}$	138,3 jours	5,29 Mev		0,800	$\alpha/\gamma \approx 0,03$	0,000012
Ra G	$^{206}_{82}\text{Pb}$	Stable					

2.1. - Solubilité dans l'eau

On peut définir un coefficient de diffusion du Radon dans l'eau, de la même façon que dans l'air. Il est plus intéressant de déterminer le coefficient de solubilité dans l'eau.

Il est égal au rapport des concentrations d'équilibre dans l'eau et dans l'air situé au-dessus, et ceci pour une température donnée. Sa valeur est de 0,25 pour une température ambiante de 15 degrés centigrades.

Marie CURIE écrit : "Approximativement et pour des volumes égaux d'eau et d'air, le quart du Radon se trouve dans l'eau et les trois quarts dans l'air". Quand la température augmente, le coefficient de solubilité dans l'eau passe de 0,51 à zéro degré, à 0,10 à cent degrés centigrades. A l'ébullition de l'eau, on peut considérer que le Radon a été complètement chassé.

2.2. - Adsorption sur les solides

C'est une propriété importante à connaître. Dans les modes de dosage du Radon, il en sera tenu compte pour choisir le matériel.

Les substances sur lesquelles le Radon s'adsorbe particulièrement bien seront utilisées comme "piège" à gaz, pour le stocker, après extraction de l'eau.

Le charbon et plus précisément le charbon actif sont des substances sur lesquelles la presque totalité du Radon présent s'adsorbe à la température ordinaire.

En élevant la température, le Radon quitte ces substances ; on considère qu'aux alentours de 400 degrés centigrades, il n'y a plus de Radon adsorbé.

Le Radon s'adsorbe également sur le gel de silice. J. MEGY et A.M. RAMOS ont étudié cette adsorption en fonction du débit de l'air qui entraîne le gaz, des températures du gel et de l'air entraîneur. Par ailleurs, ce gaz s'adsorbe en partie sur le caoutchouc.

A la température ordinaire, le verre, les métaux, sont des matériaux sur lesquels le Radon ne s'adsorbe pas.

Un cas particulier est intéressant à considérer, c'est le comportement du Radon vis à vis des matières plastiques : (polyéthylène, chlorure de polyvinyle).

Ces substances servent à la fabrication de récipients souvent utilisés pour recueillir, transporter et stocker les échantillons d'eau.

Les avis des auteurs qui ont étudié ce problème divergent, pour devenir parfois contradictoires. Ainsi R.C. TURNER et ses collaborateurs affirment que le Radon ne s'adsorbe pas sur le polyéthylène. Ils ont effectué des expériences avec des récipients renfermant des solutions de concentrations étagées de Radon. Dans les deux cas ils n'ont pas observé d'activité α résiduelle.

De même J. MEGY et A.M. RAMOS utilisent pour le stockage du Radon des récipients de polyéthylène. Pour eux, l'adsorption et la diffusion à travers la paroi sont inexistantes.

Cependant KEER et ses collaborateurs prétendent que le Radon s'adsorbe sur le polyéthylène. Leur expérimentation montre

que le comptage d'une solution étalon dépend de la nature du récipient la contenant. Ce comptage est satisfaisant pour une solution contenue dans un récipient de verre, beaucoup moins dans le cas de solution contenue dans un récipient de polyéthylène, ou un récipient de verre aux parois internes recouvertes de polyéthylène.

Pour nous, nous le verrons, l'utilisation de bonbonnes porte-échantillon en chlorure de polyvinyle ne nous a pas permis de constater d'adsorption du Radon.

Enfin, on doit noter que les parois solides condensent le Radon à basse température, - 180 centigrades, température de l'air liquide.

Nous verrons plus loin, qu'adsorption et condensation à basse température sont utilisées pour "piéger" le Radon.

2.3. - Propriétés Radioactives

Le Radon se désintègre par émission de particules α d'énergie 4,590 Mev.

III - DESCENDANTS DU RADON

Ils peuvent être classés en deux groupes :

1 - Le premier comprend les nuclides à périodes courtes ; il est appelé dépôt actif à évolution rapide.

Les radioéléments constituant ce groupe sont :

Le Ra A de période 3,05 minutes, le Ra B de période 26,80 minutes, le Ra C de période 19,70 minutes.

Ces éléments sont des corps solides ; le nom de dépôt actif a été donné au groupe.

Ces trois nuclides émettent des particules α (Ra A, Ra C), des particules β (Ra B ; Ra C), des photons γ (Ra B ; Ra C).

Comme pour le Radium et le Radon, nous avons noté sur le tableau (2), le nombre de photons d'énergie déterminée émis par désintégration, et leurs pourcentages respectifs.

On note que, malgré les nombreux travaux effectués à ce sujet, ces valeurs sont encore imparfaitement établies. Le grand nombre de radiations émises rend l'étude très complexe, ce qui explique les discordances existant entre les résultats expérimentaux publiés.

Prenons l'exemple du Ra C ou ^{214}Bi . Ce corps se désintègre par émission de particules α 83 ou β . On a là un embranchement radioactif.

La désintégration par émission β est la plus importante ; elle représente 99 % des cas.

Deux groupes de rayons β sont émis :

- L'un d'énergie maximum 1,65 Mev, représente 77 % des particules.

- L'autre d'énergie maximum 3,17 Mev en représente 23 %.

Ce mode de désintégration conduit au Ra C'. Celui-ci se désintègre en donnant des particules α , 45 % ont une énergie de 5,505 Mev, 54 % de 5,444 Mev.

que le comptage d'une solution étalon dépend de la nature du récipient la contenant. Ce comptage est satisfaisant pour une solution contenue dans un récipient de verre, beaucoup moins dans le cas de solution contenue dans un récipient de polyéthylène, ou un récipient de verre aux parois internes recouvertes de polyéthylène.

Pour nous, nous le verrons, l'utilisation de bonbonnes porte-échantillon en chlorure de polyvinyle ne nous a pas permis de constater d'adsorption du Radon.

Enfin, on doit noter que les parois solides condensent le Radon à basse température, - 180 centigrades, température de l'air liquide.

Nous verrons plus loin, qu'adsorption et condensation à basse température sont utilisées pour "piéger" le Radon.

2.3. - Propriétés Radioactives

Le Radon se désintègre par émission de particules ~~et~~ d'énergie 4,510 Mev.

III - DESCENDANTS DU RADON

Ils peuvent être classés en deux groupes :

1 - Le premier comprend les nuclides à périodes courtes ; il est appelé dépôt actif à évolution rapide.

Les radioéléments constituant ce groupe sont :

Le Ra A de période 3,05 minutes, le Ra B de période 26,80 minutes, le Ra C de période 19,70 minutes.

Ces éléments sont des corps solides ; le nom de dépôt actif a été donné au groupe.

Ces trois nuclides émettent des particules α (Ra A, Ra C), des particules β (Ra B ; Ra C), des photons γ (Ra B ; Ra C).

Comme pour le Radium et le Radon, nous avons noté sur le tableau (2), le nombre de photons d'énergie déterminée émis par désintégration, et leurs pourcentages respectifs.

On note que, malgré les nombreux travaux effectués à ce sujet, ces valeurs sont encore imparfaitement établies. Le grand nombre de radiations émises rend l'étude très complexe, ce qui explique les discordances existant entre les résultats expérimentaux publiés.

Prenons l'exemple du Ra C ou ^{214}Bi . Ce corps se désintègre par émission de particules α 83 ou β . On a là un embranchement radioactif.

La désintégration par émission β est la plus importante ; elle représente 99 % des cas.

Deux groupes de rayons β sont émis :

- L'un d'énergie maximum 1,65 Mev, représente 77 % des particules.

- L'autre d'énergie maximum 3,17 Mev en représente 23 %.

Ce mode de désintégration conduit au Ra C'. Celui-ci se désintègre en donnant des particules α , 45 % ont une énergie de 5,505 Mev, 54 % de 5,444 Mev.

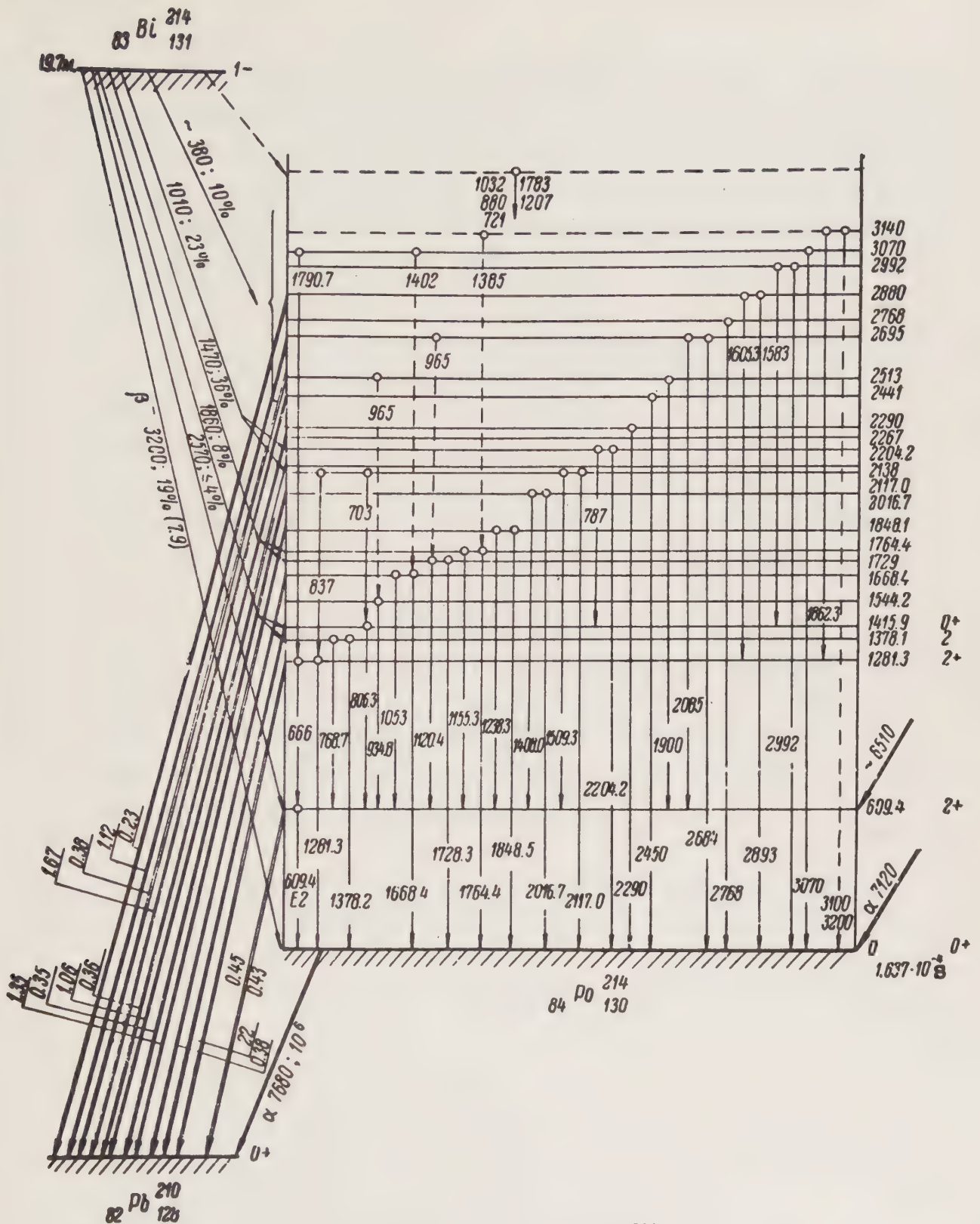


Schéma de désintégration du RaC : $^{214}_{83}\text{Bi}$

(D'après DZELPOV)

Lors de l'émission des particules β , un grand nombre de photons γ sont émis. H. BLATZ en mentionne onze allant de 0,609 Mev à 2,42 Mev. En ce qui concerne leur proportion relative, elle varie de 9 pour le photon de 0,609 Mev, à 0,2 pour celui de 1,820 Mev ; la proportion des photons de 2,20 Mev est prise comme unité.

T.P. KOHMAN donne dans sa table le nombre de photons γ émis par désintégration de RaC, pour ces onze rayons γ ; ainsi, pour celui d'énergie 0,609 Mev, il indique 0,296 photons γ émis par désintégration.

Ces valeurs, nombre de photons γ , pourcentages respectifs, nombre de photons d'énergie déterminée émis par désintégration, ne sont pas encore rigoureusement établies.

Ainsi DZELPOV indique que le $^{214}_{83}\text{Bi}$, en se désintégrant, émet des rayons β de quatre énergies maxima différentes, accompagnés par dix huit groupes de photons γ . La figure ci-contre montre le schéma de désintégration de cet élément et donne une idée de la complexité en résultant, pour déterminer le nombre de photons émis par désintégration.

Nous conserverons pour l'instant, les valeurs qu'indique T.P. KOHMAN ; Quand nous étudierons le principe des mesures par spectrométrie γ , nous verrons les valeurs déterminées par les autres auteurs.

2 - Le deuxième groupe de nuclides faisant suite au Radon, comprend des éléments à périodes relativement courtes, mais il débute avec un élément à période longue, ce qui donne à l'ensemble une évolution lente.

On a donné le nom de dépôt actif à évolution lente à ce groupe.

Le premier élément est le RaD, qui a pour période

22 ans ; le RaE, période 5 jours, le RaF période 138,3 jours, enfin le RaG non radioactif lui font suite.

Dans le tableau (2) nous avons indiqué le type de particules ou radiations émises ainsi que leurs pourcentages respectifs.

IV - EQUILIBRES RADIOACTIFS

Considérons l'élément radioactif A^* qui se désintègre en donnant l'élément radioactif B^* , lequel donne C élément stable.

Soient :

- a_0, b_0 les nombres d'atomes respectifs de A^* et B^* présents à l'origine des temps.

- a, b , les nombres d'atomes des deux éléments présents au temps t .

- λ_1, λ_2 les constantes radioactives de A^* et B^* .

a et b décroissent en fonction du temps selon :

$$a = a_0 \cdot e^{-\lambda_1 t} \quad (1)$$

$$b = b_0 \cdot e^{-\lambda_2 t} \quad (2)$$

Ces relations traduisent que le nombre d'atomes non désintégrés décroît exponentiellement en fonction du temps.

Le nombre d'atomes $\frac{da}{dt}$ qui disparaissent, par unité

de temps, par désintégration s'exprime par :

$$\frac{da}{dt} = -\lambda_1 a$$

Considérons à la date t , la variation instantanée $\frac{db}{dt}$ du nombre d'atomes de B^* .

Cette variation est égale à la différence entre le nombre d'atomes qui se forment à partir de A et de ceux qui disparaissent par désintégration pour donner C .

$$\frac{db}{dt} = \lambda_1 \cdot a - \lambda_2 b$$

soit en tenant compte de (1) et (2) :

$$\frac{db}{dt} = \lambda_1 \cdot a_0 \cdot e^{-\lambda_1 t} - \lambda_2 \cdot b_0 \cdot e^{-\lambda_2 t}$$

l'intégration de cette expression conduit à la relation :

$$(3) \quad b = b_0 \cdot e^{-\lambda_2 t} + a_0 \cdot \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \left(e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t} \right)$$

cette relation est la somme de deux termes :

1) le premier représente l'activité liée aux atomes de B^* initialement présents.

2) le deuxième représente l'activité due à la destruction des atomes de B^* qui ont été produits à partir de A^* .

Représentons graphiquement le nombre d'atomes de B* en fonction du temps, pour différentes valeurs relatives de λ_1 et λ_2 .

4.1. - Supposons que λ_1 soit négligeable devant λ_2 .

Cela revient à dire que T_1 est très grand devant T_2 .

Dans ce cas $\lambda_2 - \lambda_1 \simeq \lambda_2$ la relation générale s'écrit :

$$b = b_0 \cdot e^{-\lambda_2 t} + a_0 \cdot e^{-\lambda_1 t} \frac{\lambda_1}{\lambda_2} \left(1 - e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t} \right)$$

en négligeant encore λ_1 devant λ_2 :

$$b = b_0 \cdot e^{-\lambda_2 t} + a_0 \cdot e^{-\lambda_1 t} \frac{\lambda_1}{\lambda_2} \left(1 - e^{-\lambda_2 t} \right)$$

en remarquant que : $a_0 \cdot e^{-\lambda_1 t} = a$

$$b = b_0 \cdot e^{-\lambda_2 t} + a \cdot \frac{\lambda_1}{\lambda_2} \left(1 - e^{-\lambda_2 t} \right)$$

Au bout d'un temps suffisamment long $e^{-\lambda_2 t}$ s'identifie à zéro et l'expression devient :

$$b = a \cdot \frac{\lambda_1}{\lambda_2}$$

ou :

$$\lambda_2 \cdot b = \lambda_1 \cdot a$$

Or $\lambda_2 b$, nombre d'atomes de B^* qui disparaît, mesure l'activité de B^* ; de même $\lambda_1 a$ mesure l'activité de A^* ; les activités de A^* et B^* sont donc égales.

Les deux éléments A et B sont en équilibre radioactif.

Si à l'échelle de l'observateur humain, la période de A^* est très grande, son activité paraît constante ; entre A^* et B^* existe un équilibre séculaire.

Il en est ainsi du ^{226}Ra ($T = 1622$ ans) et du ^{222}Rn ($T = 3,8$ jours).

Si pour $T = 0$, la quantité de Radon présent est nulle, le nombre d'atomes de cet élément augmente en fonction du temps et atteint la limite où l'équilibre radioactif existe, en 30 jours.

La fig. (A), représente graphiquement le nombre d'atomes de Radon en fonction du temps.

La courbe I représente le nombre d'atomes en fonction du temps quand le Radon n'est pas présent au temps zéro.

Les courbes II et III représentent ce nombre d'atomes quand cet élément est présent à l'origine des temps.

Les courbes IV et V, représentent la destruction des atomes de Radon présents au temps zéro.

4.2. - Supposons que λ_1 soit plus petit que λ_2 :

L'exponentielle $e^{-\lambda_2 t}$ décroît plus vite que $e^{-\lambda_1 t}$;

il arrive un moment où elle peut être négligée ; la relation générale devient :

$$b = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot a_0 \cdot e^{-\lambda_1 t}$$

remplaçons $a_0 \cdot e^{-\lambda_1 t}$ par sa valeur en a :

$$b = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot a$$

On en tire :

$$\frac{b}{a} = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1}$$

Les activités A^* et B^* sont :

$$\text{Activité de A} = \lambda_1 \cdot a$$

$$\text{Activité de B} = \lambda_2 \cdot b$$

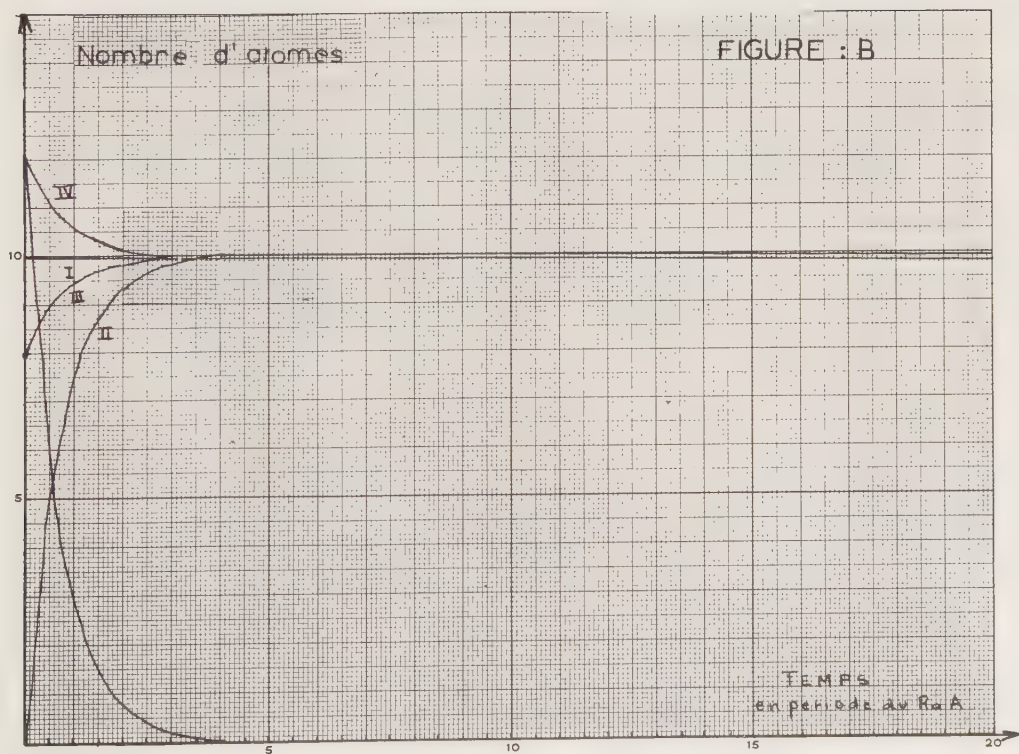
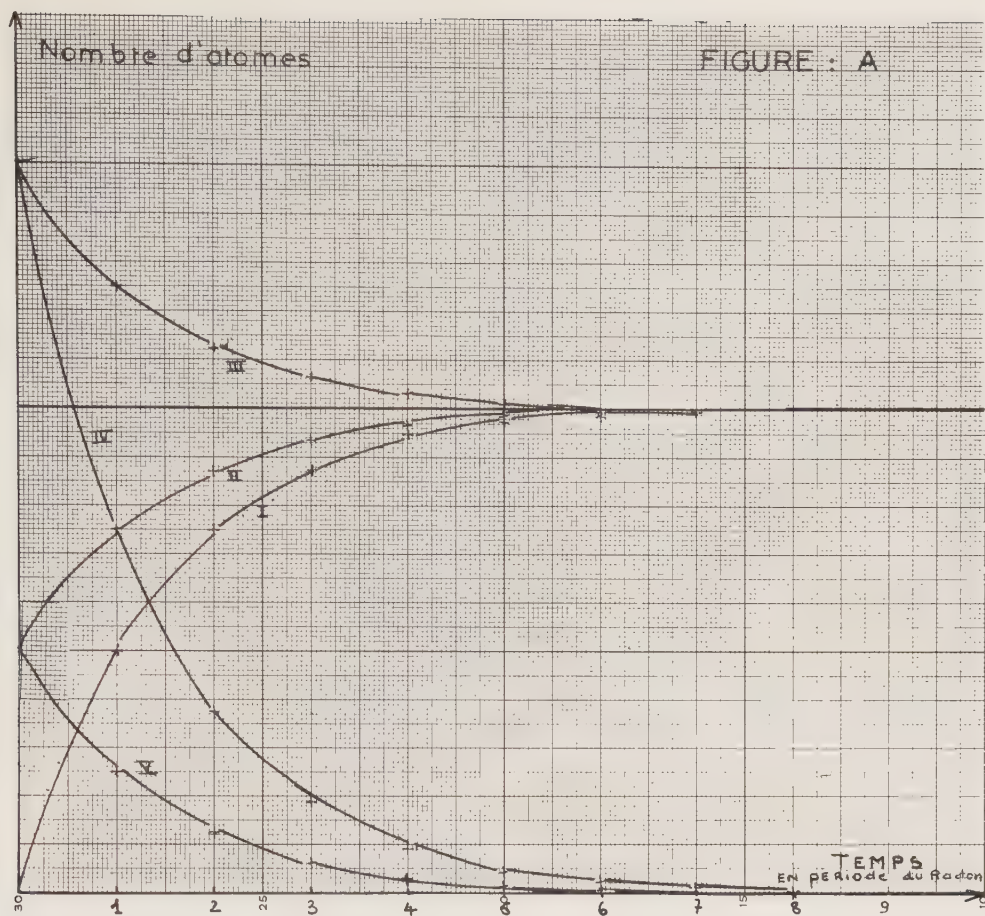
La valeur du rapport $\frac{b}{a}$ permet d'écrire :

$$\frac{\lambda_2 b}{\lambda_1 a} = \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} = 1 - \frac{\lambda_1}{\lambda_2}$$

Ceci montre qu'au bout d'un certain temps, les activités de A^* et de B^* sont dans un rapport constant.

Il s'établit entre elles un équilibre de régime ; les activités de A^* et de B^* décroissent avec la période de A^* .

On remarque qu'il existe un temps t où l'égalité des



activités existe, ce temps est celui où $b = f(t)$ passe par un maximum.

On peut écrire que la dérivée de la fonction est nulle, donc :

$$\frac{db}{dt} = \lambda_1 \cdot a - \lambda_2 \cdot b = 0$$

ce qui suppose que $\lambda_1 a = \lambda_2 b$
C'est-à-dire que les activités sont égales.

Ceci se passe avec le ^{222}Rn ($T = 3,8$ jours) et le RaA (3,05 minutes).

Nous avons représenté, fig. (B) le nombre d'atomes de RaA en fonction du temps.

- La courbe I représente l'évolution du nombre d'atomes du Radon.

- La courbe II représente l'évolution du nombre d'atomes de RaA, quand cet élément est absent au temps zéro.

- Les courbes III et IV représentent l'évolution du nombre d'atomes de RaA, quand cet élément est présent à l'origine des temps.

A l'équilibre de régime, les activités du RaA et du ^{222}Rn sont dans un rapport constant égal à :

$$1 - \frac{\lambda_1}{\lambda_2}$$

$$\text{Or } \frac{\lambda_1}{\lambda_2} = \frac{T_2}{T_1} = \frac{3,05 \text{ minutes}}{3,8 \text{ jours}} = 5 \times 10^{-4}$$

Donc les activités du RaA et du Rn sont égales à 5/10.000ème près.

4.3. - Cas des eaux minérales

Dans les eaux minérales, la quantité de Radon dissous est en général bien supérieure à celle qui correspond à l'équilibre avec le Radium présent.

L'évolution du nombre d'atomes de Radon présent dans ces eaux est représenté fig. (A) courbe III.

Le Radon décroît et se met en équilibre avec le Radium. En se désintégrant il donne ses descendants, en particulier ceux à vie courte, RaA, RaB, RaC.

Pour connaître l'évolution du nombre d'atomes de RaC par exemple, nous nous adressons à l'équation (3) qui se généralise à n éléments et s'écrit :

$$N_n = \lambda_1 \cdot \lambda_2 \cdots \lambda_{n-1} N_1^0 \left[\frac{e^{-\lambda_1 t}}{(\lambda_2 - \lambda_1) \cdots (\lambda_n - \lambda_1)} \right] + \cdots + \left[\frac{e^{-\lambda_n t}}{(\lambda_1 - \lambda_n) \cdots (\lambda_{n-1} - \lambda_n)} \right]$$

Quand la première substance a une période beaucoup plus longue que les autres, au bout d'un certain temps, seule

l'exponentielle $e^{-\lambda_1 t}$ subsiste dans la relation générale. L'activité du $n^{\text{ième}}$ terme décroît alors avec la période du premier élément.

C'est ce qui se passe avec le ^{222}Rn ($T = 3,8$ jours) et ses descendants à vie courte RaA ($T = 3,05$ minutes), RaB ($T = 26,8$ minutes), RaC (19,7 minutes). Au bout d'un temps t , le RaC par exemple décroît avec la période du Radon. Un équilibre de régime s'établit entre ces deux éléments tels que les activités sont dans un rapport constant :

$$\frac{\text{activité Radon}}{\text{activité RaC}} = 1 - 0,0088$$

Les deux activités sont égales à 1 % près.

Donc la mesure de l'activité du RaC présent dans les eaux minérales permet d'atteindre l'activité du Radon présent.

Au bout d'un mois environ, le ^{222}Rn a décru et s'est mis en équilibre avec le Radium contenu dans l'eau s'il y a lieu. Le RaC est lui aussi en équilibre avec le Radon et le Radium. La mesure de son activité permet de déterminer l'activité du Radium présent.

Ce que nous venons de développer au sujet du RaC est valable pour RaA et RaB ; seul le rapport des activités à l'équilibre de régime change ; Cependant il est toujours assimilable à l'unité, avec une erreur égale ou inférieure à 1 %.

CHAPITRE II

ANALYSE DES METHODES DE DOSAGE DU RADON ET DU RADIUM DES EAUX.

=====

I - GENERALITES

Considérons une eau contenant du Radium, du Radon et leurs descendants en équilibre séculaire. Pour doser le Radium ou le Radon il suffit d'isoler n'importe quel membre de la famille et de mesurer son activité. Les différents éléments étant en équilibre radioactif, leurs activités sont égales.

Quand l'eau contient une quantité de Radon supérieure à celle qui correspond à l'équilibre avec le Radium présent, nous avons vu que le dosage d'un des descendants du Radon à vie courte permet d'atteindre l'activité de ce dernier avec une erreur inférieure à 1 %.

Parmi tous ces radioéléments, le Radon, parce qu'il est un gaz, est celui qui est le plus facile à isoler. L'extraction du Radon est à la base d'un certain nombre de méthodes que nous étudierons.

Nous verrons ensuite des procédés par lesquels on isole le Radium ou l'un de ses descendants, à l'exception du Radon.

Le choix entre ces deux groupes de méthodes dépend de la nature de l'échantillon et surtout de la présence ou non de Radium. Quand celle-ci est effective, on peut donc envisager, soit l'extraction du Radium, soit celle du Radon. Dans le cas où l'eau renferme surtout du Radon dissous, cas le plus souvent rencontré, on pourra, soit extraire le Radon, soit doser l'un de ses descendants. Enfin nous étudierons un mode de dosage du Radium et du Radon, par les techniques d'émulsions nucléaires.

II - METHODES BASEES SUR L'EXTRACTION DU RADON, LA MESURE DE SON ACTIVITE, OU DE CELLE DE SES DESCENDANTS

La première méthode utilisant ce principe a été décrite par M. CURIE (1910). Elle est toujours à la base de nombreux modes opératoires, certains points de technique ayant été précisés par les auteurs.

L'opération comprend trois temps :

1. Extraction du Radon de l'eau.
2. Stockage du Radon.
3. Mesure de l'activité présente.

1. - Extraction du Radon de l'eau

=====

En étudiant les propriétés physiques du Radon, nous

avons vu que la solubilité du gaz dans l'eau diminue quand la température s'élève ; à 100 degrés centigrades, on peut considérer que la totalité du Radon est chassée de l'eau. Ceci constitue la première méthode d'extraction du Radon.

1.1. - Ebullition

Le mode opératoire préconisé par M. CURIE peut se résumer ainsi :

L'eau est enfermée dans un ballon. Elle est portée à ébullition, ce qui chasse le Radon dissous. Après passage dans un réfrigérant ascendant qui le débarrasse de la vapeur d'eau, il est recueilli sur une cuve à mercure. (fig. 2).

Ce procédé est recommandé par M. CURIE pour doser le Radon en équilibre avec le Radium.

L'eau est prélevée avec précaution pour éviter toute perte de Radon. La date du prélèvement est notée ; on procède le plus rapidement possible à l'extraction du gaz par ébullition et comme précédemment, on le recueille sur la cuve à mercure.

A. LEPAPE et ses collaborateurs (1925) ont utilisé cette méthode pour mesurer les teneurs en Radium et en Radon des eaux thermales françaises, en particulier celles de la station de ROYAT.

Pour doser le Radon dissous, ils prélèvent l'eau au griffon de la source, dans des ballons d'un litre, en pyrex. Ils notent la date et l'heure du prélèvement. Ils extraient rapidement le Radon par ébullition, le recueillent dans un condenseur, et l'entraînent à l'aide d'un courant d'air vers l'appareil de mesure.

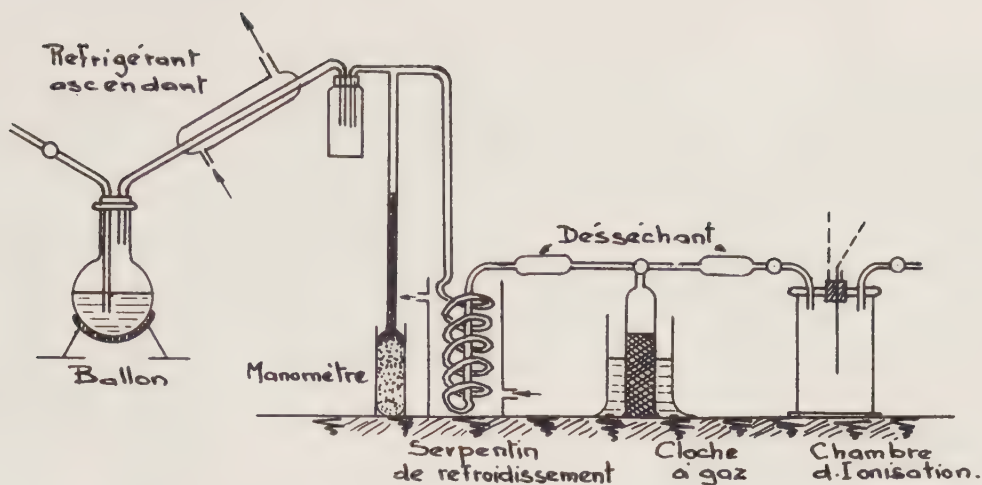


Figure . 2 d'après M^{me}. CURIE

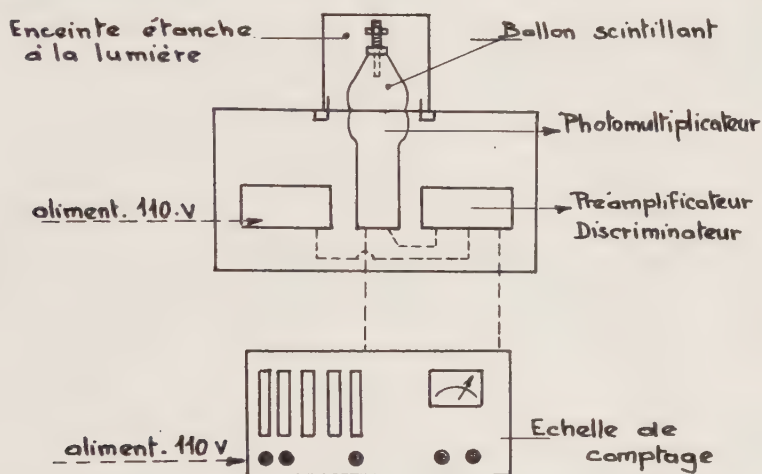


Figure 9 d'après B. HIGGINS

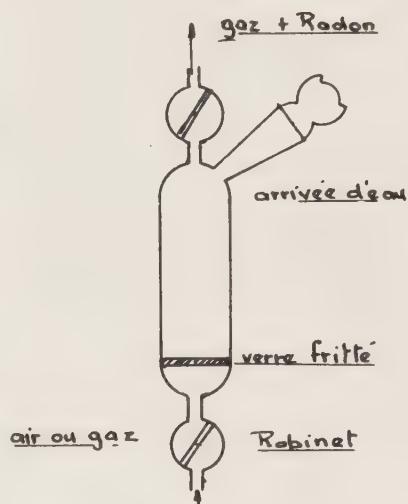


Figure 4 d'après B. HIGGINS

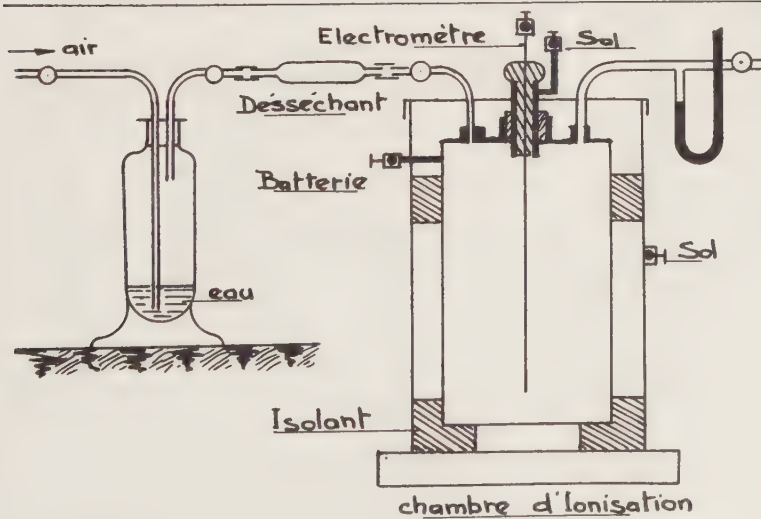
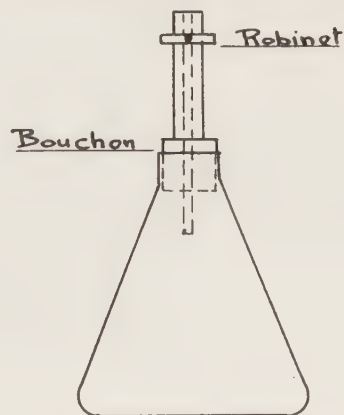


Figure.3

d'après M^{me}. CURIE



Erlenmeyer de 125 ml
Figure 8 Ballon Scintillant
de B. HIGGINS

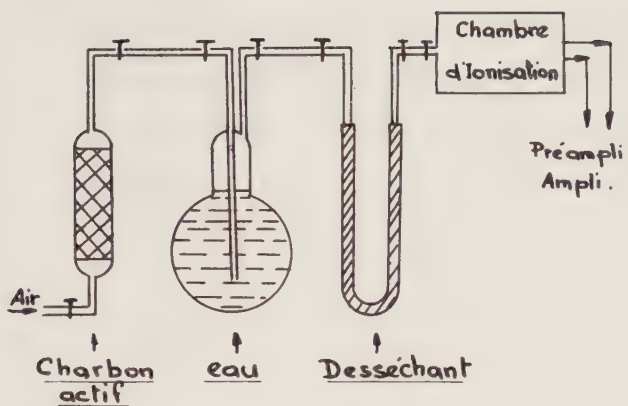


Figure 5 d'après A. FRITSCH

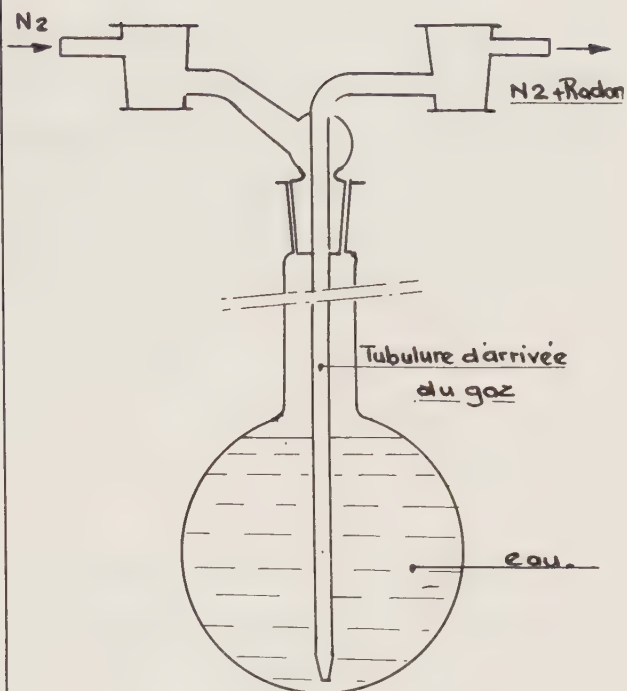


Figure 6 d'après W. TROOSKENS

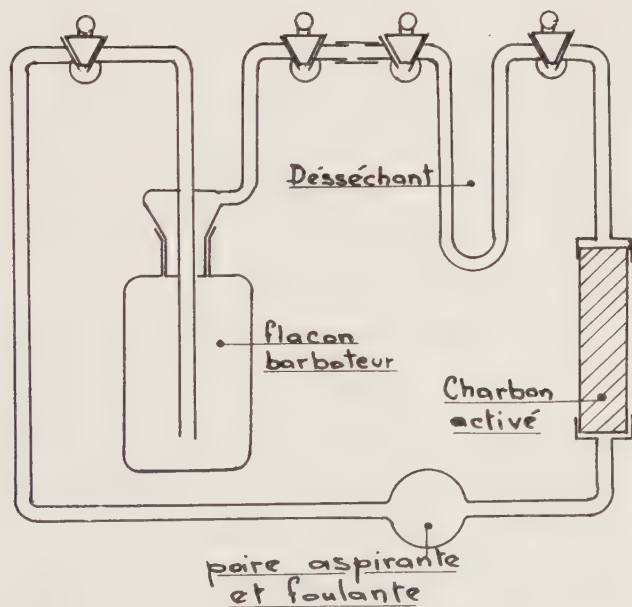


Figure . 7

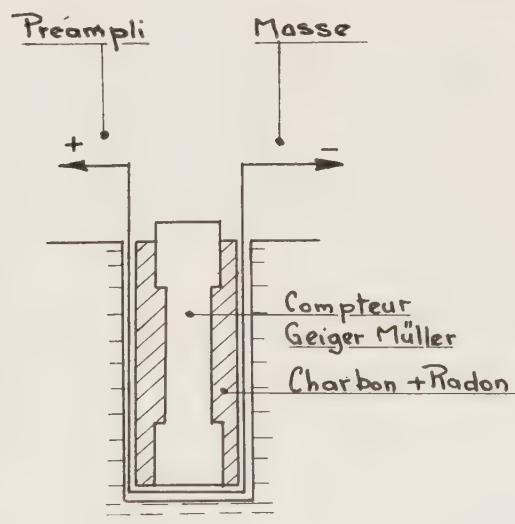


Figure . 10

d'après G. JURAIN

Pour doser le Radium, ces auteurs opèrent sur trente litres d'eau. Après évaporation le Radium est précipité sous forme de sulfates en présence de chlorure de baryum. Le précipité est dissous dans l'acide chlorydrique. On laisse s'accumuler le Radon dans cette solution, puis, comme précédemment on l'extrait par ébullition et on l'envoie vers les appareils de mesure.

1.2. - Barbotage

M. CURIE a décrit un second procédé d'extraction du Radon. Celui-ci se réalise à l'aide d'un courant d'air ou de gaz (azote, argon, ...) traversant la solution dans laquelle il barbote. fig. (3).

Le gaz étant introduit sous forme de bulles au sein du liquide, l'extraction du Radon est très accélérée puisque les échanges se font :

- dans toute la masse du liquide qui est continuellement brassée,
- à travers une surface eau-bulle qui est très grande.

M. CURIE réserve cette technique au dosage du Radium dans les minerais d'Uranium mis en solution par un traitement chimique. Elle pensait que cette méthode convenait mal aux eaux minérales, car les quantités d'eau sont petites et par là, les quantités de Radon extraites faibles.

Cependant, la sensibilité des appareils de mesure s'étant améliorée depuis les expériences de M. CURIE, la méthode d'extraction du Radon par barbotage est la plus utilisée.

R.B. JACOBY (1949) utilise ce procédé.

Le ballon barboteur doit être à moitié rempli d'eau. Dans l'eau plonge un tube amenant le gaz entraîneur.

A l'extrémité du tube, un dispositif composé essentiellement d'un filtre de verre fritté, disperse en fines bulles le gaz qui entraînera le Radon. Ce "bulleur" augmente le rendement d'extraction en assurant un contact plus étroit entre le gaz extracteur et l'eau. Cela permet de réduire le volume du gaz nécessaire pour extraire le Radon présent. L'auteur utilise ce procédé pour doser le Radon dissous.

Pour doser le Radium, il le concentre comme le faisait A. LEPAPE. Il précipite le Radium par formation d'un sel insoluble en présence de chlorure de baryum servant d'entraîneur.

Après remise en solution, il extrait le Radon accumulé pendant un temps donné, par la méthode décrite plus haut.

L'auteur utilise l'azote ou l'argon comme gaz, pour extraire le Radon.

HUDGENS (1950), HURSH (1953), opèrent de manière analogue, en utilisant comme gaz extracteur l'azote.

L'argon est utilisé dans des modes opératoires semblables à ceux que nous venons de décrire par RIEK et PERKINS (1956).

F.B. HIGGINS et ses collaborateurs (1957) utilisent le dispositif schématisé fig. (4).

Il est constitué essentiellement par un cylindre en verre, portant à ses deux extrémités des tubulures très fines, fermées par des robinets capillaires. Un filtre de verre fritté est disposé en travers du cylindre, il sert à disperser les gaz extracteurs en fines bulles.

Par la tubulure inférieure arrive le gaz qui entraîne le Radon présent dans l'eau et quitte le récipient par la tubulure opposée.

Les auteurs précisent que :

- Le volume de l'appareil doit être assez grand pour permettre l'extraction complète du Radon de l'échantillon d'eau.
- Le rapport longueur sur largeur doit être tel qu'il assure un contact suffisant entre l'eau et l'air. Il doit laisser un espace pour l'expansion de l'eau lors du barbotage..
- Le filtre doit permettre la production de fines bulles bien réparties dans l'eau.

En utilisant l'air comme gaz extracteur, l'appareil doit avoir 40 ml de volume dont 25 ml occupés par l'eau.

Ce dispositif permet le dosage du Radon dissous dans un premier temps, puis du Radon engendré par le Radium présent.

A. FRITSH et ses collaborateurs (1959) utilisent le dispositif décrit fig. (5).

Le Radon est extrait de l'eau par barbotage d'air atmosphérique. Cet air est au préalable épuré par passage sur charbon actif.

Ces auteurs n'utilisent pas de dispositif pour diviser l'air en fines bulles, leur barboteur comprend essentiellement une tubulure plongeant dans l'échantillon d'eau.

Le temps nécessaire à l'extraction du Radon d'un volume d'eau de 500 ml est de une heure.

W. TROOSKENS et ses collaborateurs (1959) utilisent un appareil analogue à celui de A. FRITSH. fig (6).

Le gaz extracteur est l'azote. Ces auteurs précisent que la quantité nécessaire à l'extraction du Radon contenu dans 500 ml d'eau est égale à vingt fois ce volume.

G. JURAIN (1963) décrit dans sa thèse deux appareillages.

- Quand il effectue les mesures par détection des rayons bêta, il utilise le montage de la fig. (7).

Une poire en caoutchouc fait office de pompe aspirante et foulante, et permet de faire barboter de l'air à travers l'eau analysée.

Cet air abandonne le Radon sur une cartouche de charbon actif. Avec ce système, deux litres d'air permettent d'extraire le gaz contenu dans un litre d'eau.

Ce matériel fragile s'est avéré d'un emploi difficile lors de mesures sur le terrain.

- Lorsqu'il utilise la détection des particules alpha, il procède de la façon suivante :

Le vide est fait dans un tube de 60 ml de volume, contenant un barreau aimanté, fermé par un bouchon de caoutchouc.

L'échantillon d'eau est introduit par l'intermédiaire d'une seringue hypodermique dont l'aiguille traverse le bouchon.

L'extraction du Radon est obtenue en faisant barboter de l'air dans l'eau au moyen d'une grosse aiguille traversant le bouchon et s'arrêtant à quelques millimètres du fond. Les mouvements du barreau aimanté, créés et entretenus par un agitateur magnétique, augmentent la vitesse d'extraction du gaz.

Avec ce dispositif, le Radon contenu dans 30 ml d'eau est extrait en 15 minutes.

Ce procédé a permis à l'auteur des mesures en série sur le terrain.

2. - Stockage du Radon

=====

Ce deuxième temps de la méthode n'est pas utilisé par tous les auteurs. Si l'échantillon d'eau est de faible volume et le gaz extracteur finement divisé, il semble qu'une faible quantité de gaz soit nécessaire pour extraire le Radon. Dans le cas inverse, grande quantité d'eau, absence de bulleur, la quantité de gaz nécessaire est grande.

Ainsi, nous avons vu que pour W. TROOSKENS, il faut 10 litres d'azote pour extraire le Radon présent dans 500 ml d'eau. On ne peut alors envoyer directement ce mélange aux appareils de mesure dont la capacité ne dépasse pas le plus souvent, un à deux litres.

Il faut donc "piéger" le Radon sur un adsorbant. Diverses substances peuvent remplir ce rôle :

- Le charbon actif, sur lequel le Radon s'adsorbe à la température ordinaire, est le plus souvent utilisé.

W. TROOSKENS emploie cette substance. Les 10 litres de mélange, azote, Radon, passent sur une cartouche de charbon actif qui retient le Radon. En chauffant la cartouche à 500 degrés centigrades, le gaz est libéré ; on l'entraîne par un faible volume d'azote, dans une chambre d'ionisation de un litre de capacité.

G. JURAIN se sert de charbon actif pour "piéger" le Radon, quand il mesure l'activité présente par détection des particules β . La cartouche de charbon sert de porte échantillon vis à vis du compteur GEIGER-MULLER employé.

- Le gel de silice

R.B. JACOBI et ses collaborateurs (1949) placent le gel de

silice dans un mélange réfrigérant, constitué par de l'oxygène liquide.

L'adsorption et la condensation du Radon, à basse température, sont employées dans ce dispositif.

J. MEGY et A.M. RAMOS emploient le gel de silice pour concentrer le Radon présent dans l'air expiré par l'homme. Ils ont étudié les différents gels existants et les ~~sur~~ facteurs agissant sur l'adsorption.

Le gel de silice pur leur a paru le meilleur, le Radon étant difficile à extraire quand il est adsorbé sur des gels de silice colorés.

L'influence de la température est manifeste :

- celle de l'air transportant le Radon doit être de
- 60 degrés centigrades.
- celle du mélange réfrigérant contenant le gel de silice, doit approcher - 160 degrés centigrades.

Ici encore on remarque l'association des deux propriétés physiques du Radon :

- Adsorption.
- Condensation.

Le débit de l'air doit être réglé de façon à assurer un temps de contact suffisant entre le Radon et le gel de silice, pour que l'adsorption ait lieu totalement.

Avec leur appareillage, ce débit est de 5 litres/ minutes. Le Radon est chassé de la matière adsorbante en plon-

geant le gel de silice dans l'eau bouillante. Un courant d'air sec d'azote transporte le gaz vers les appareils de mesure.

3. - Mesure des activités

=====

Après avoir isolé le Radon, on va mesurer son activité ou celle de ses descendants à vie courte.

Cette mesure peut s'effectuer de trois façons, par détection :

- des particules α
- des particules β
- des photons γ

Les premiers auteurs M. CURIE, A. LEPAPE etc... n'avaient à leur disposition que des chambres d'ionisation associées à des électromètres. Ces appareils sont particulièrement bien adaptés au comptage des particules α , c'est pourquoi, ils utilisaient surtout ce mode de détection.

La mise au point des photomultiplicateurs vers 1950, a permis l'utilisation des substances scintillantes, notamment, le sulfure de zinc activé à l'argent, dans les "ballons scintillants", qui prirent le pas sur les chambres d'ionisation.

Nous allons voir que le comptage des particules α reste le plus souvent utilisé ; quelques auteurs s'adresseront néanmoins aux particules β , pratiquement personne ne s'est attaché à la détection des photons γ .

3.1. - Détection et comptage des particules α .

Après avoir extrait et recueilli le Radon dans les

appareils de mesure, on attend que ce gaz soit en équilibre radioactif avec ses descendants à vie courte, ce qui est réalisé en 3 heures 30 minutes.

On effectue alors la mesure.

Une étude expérimentale préalable permet de connaître l'efficacité de comptage des particules α en fonction de leur énergie.

Connaissant le schéma de désintégration du Radon et de ses descendants, la proportion relative des particules α des diverses énergies, on peut connaître le nombre de particules α émises par le Radon, donc calculer son activité.

- Chambre d'ionisation

C'est l'appareil de mesure de radioactivité le plus ancien, que l'on utilise encore fréquemment.

Le courant d'ionisation produit par les particules α émises par le Radon et ses descendants, est mesuré en appréciant la vitesse de déplacement de la feuille d'or d'un électromètre.

L'activité présente est calculée en comparant cette vitesse à celle que provoque une source étalon de Radium.

A. LEPAPE opère de cette façon en 1925, quand il mesure la radioactivité des eaux de ROYAT.

R.B. JACOBI et J. HURSCH utilisent une chambre d'ionisation de 600 ml. Le gaz entraîneur est l'argon, gaz facilement ionisable. La mesure du courant d'ionisation est faite avec un amplificateur linéaire, une échelle de comptage.

A. FRITSH opère avec une chambre en laiton de 8 litres de capacité. La mesure du courant d'ionisation se fait avec une grande résistance associée à une lampe électromètre.

Cet auteur indique la précision de ses mesures. L'erreur relative est inférieure ou égale à 30 %, pour une concentration de Radon de $2 \cdot 10^{-12}$ curies par litre ; elle est de 3 % avec $2 \cdot 10^{-10}$ curies.

W. TROOSKENS procède avec une chambre en aluminium de un litre de capacité. L'étanchéité, toujours difficile à obtenir qui rend ces appareils peu maniables, a été réalisée de façon aussi satisfaisante que possible, par des joints de caoutchouc.

Un montage électronique analogue à celui utilisé par R.B. JACOBI, permet la mesure des activités.

Avec ce dispositif, l'auteur affirme obtenir un rendement de comptage de 80 %.

G. JURAIN a effectué des mesures avec une chambre d'ionisation de 2 litres de capacité. L'erreur relative est au plus égale à 10 % pour des concentrations de Radon de 10^{-12} à 10^{-10} curies de Radon par litre d'eau.

En résumé, les chambres d'ionisation permettent des mesures précises, mais elles sont fragiles et d'un emploi difficile hors du laboratoire.

- Les compteurs à scintillations

Les substances scintillantes, comme le sulfure de zinc activé à l'argent, émettent une scintillation sous l'action des particules α . La lumière ainsi produite est reçue par un photomultiplicateur.

Chaque scintillation fait apparaître, à la sortie du photomultiplicateur, une impulsion qui est détectée par une échelle.

ROSHOLT (1957), D.A. NORKEN (1959), ont étudié les substances scintillantes ; Ils précisent que pour la détection des particules α , l'épaisseur du scintillateur ne doit pas être trop grande, car le parcours de ces particules est faible.

Pour cette raison, la substance scintillante est appliquée sur les parois mêmes du récipient de mesure. Ainsi sont réalisés les "ballons scintillants".

F.B. HIGGINS indique la façon de construire ces détecteurs. Il utilise une fiole conique d'erlenmeyer de 125 ml, fig. (8). Les parois internes sont enduites d'une solution de graisse siliconée dans le chloroforme. Ce dernier, en s'évaporant, laisse une fine pellicule de graisse qui servira de support à la matière scintillante.

Le sulfure de zinc activé à l'argent, choisi comme scintillateur, est répandu sur les parois du flacon, en faisant tourner celui-ci sur son axe.

La face inférieure et plate de l'erlenmeyer est posée sur un photomultiplicateur de grande surface. fig. (9).

Un amplificateur, un discriminateur et une échelle de comptage complètent l'ensemble de mesure.

L'auteur précise qu'une variation d'efficacité de comptage est fréquemment observée. Ceci lui semble dû, d'une part à la variation de sensibilité du sulfure de zinc, d'autre part au rendement du photomultiplicateur qui n'est pas constant.

J. MEGY et A.M. RAMOS utilisent des ballons scintillants quand ils dosent le Radon expiré par l'homme.

La construction de leurs détecteurs repose sur les mêmes principes que ceux employés par HIGGINS. La substance scintillante est constituée par du sulfure de zinc activé à l'argent.

Les auteurs indiquent que l'erreur relative est égale ou inférieure à 40 %, pour des concentrations de $1,8.10^{-13}$ curies de Radon par litre d'air ; elle est de 1 % pour $0,45.10^{-10}$ curies.

G. JURAIN utilise également des ballons scintillants, construits suivant une technique identique à celle des auteurs précédents.

Il précise un point particulier, la protection des détecteurs vis à vis de la lumière. Les ballons sont recouverts d'une couche de peinture blanche, puis de plusieurs couches de peinture noire, enfin enfermés dans des sacs en toile noire.

On remarque que ces ballons scintillants servent à la mesure d'un seul échantillon d'eau. La substance scintillante, en contact intime avec l'échantillon, est contaminée par ce dernier.

Ainsi G. JURAIN, qui effectue de nombreuses mesures est obligé d'en préparer un grand nombre. Cet auteur a pu faire 20 à 30 mesures par jour en utilisant cette technique.

3.2. - Détection et comptage des particules β .

G. JURAIN a utilisé ce procédé de comptage ; il opère avec un compteur GEIGER-MULLER cylindrique, de faible mouvement propre.

Comme nous l'avons vu, le Radon, après extraction de l'eau, est "piégé" par adsorption sur une cartouche de charbon. Celle-ci est disposée autour du compteur, elle sert de porte-échantillon. fig. (7).

Le comptage s'effectue à saturation, il n'y a pas à tenir compte de l'auto-absorption des particules β par le charbon. Les particules détectées sont émises par les descendants à période courte du Radon.

Avec cet ensemble, le rendement de comptage est de 15 %. Le faible mouvement propre de l'appareil, permet d'atteindre des concentrations de 10^{-10} à 10^{-12} curies de Radon par litre d'eau, avec une précision acceptable.

3.3. - Détection et comptage des photons γ .

Ce type de comptage semble fort peu utilisé ; nous n'avons pas trouvé dans la littérature, de technique utilisant ce mode de détection appliqué aux eaux.

Nous verrons, en étudiant en détail la détection des photons γ , que M. CURIE dosait le Radium de cette façon. Sa méthode est difficilement applicable aux eaux, car leurs concentrations en Radon et Radium sont faibles.

Cependant, il faut considérer, à priori, les rayons γ comme intéressants à détecter et à compter, car leur grand pouvoir de pénétration rend inutile la correction d'autoabsorption.

Dans la deuxième partie de ce travail, nous verrons comment l'utilisation de la spectrométrie γ permet de doser le Radium et le Radon des eaux, en détectant les photons γ .

III - METHODES BASEES SUR L'ISOLEMENT DU RADIUM OU DE L'UN DE SES DESCENDANTS EXCEPTE LE RADON

Ces techniques ont pour principe la précipitation chimique, aussi sélective que possible, du Radium ou de l'un de ses descendants. Elles s'appliquent aux eaux, mais aussi et surtout aux liquides biologiques.

- A.S. GOLDIN (1961), précipite le Radium sous forme de sulfate en présence de sulfate de baryum en excès, utilisé comme entraîneur.

Un traitement par l'acide nitrique et un agent

complexant, l'E.D.T.A., sert à purifier le précipité des autres émetteurs α présents. Le précipité final est lavé, séché, pesé et les particules α qu'il émet, sont comptées.

La limite de la méthode semble être de 10^{-12} grammes de Radium par litre.

- J.R.W. KERR et ses collaborateurs (1962) s'adressent à la précipitation sélective du $^{214}_{83}\text{Bi}$ ou RaC ; elle est obtenue par action de n-propyl-gallate.

Le précipité est lavé, séché, pesé ; l'activité du RaC est déterminée par détection des particules β qu'il émet.

L'auteur affirme pouvoir atteindre $20 \cdot 10^{-12}$ curies par litre, avec une précision suffisante.

- H. DUQUESNE et ses collaborateurs (1963) dosent le Radium en le précipitant chimiquement. Ils rappellent les procédés fréquemment utilisés :

- . La précipitation par le sulfate de baryum, qui manque de sélectivité car Po, Bi, Pb précipitent également.
- . Les résines échangeuses d'ions.
- . La précipitation par le chlorure et le nitrate de baryum qui constituent des méthodes plus sélectives.

Les auteurs choisissent de précipiter le Radium par le chlorure et le nitrate de baryum. Ils font précéder cette opération d'une précipitation par le sulfate de plomb qui élimine beaucoup d'impuretés.

Le précipité final est lavé, mis en suspension dans l'éthanol. On y incorpore du sulfure de zinc activé à l'argent. Le mélange est recueilli sur filtre et placé sur un disque de plexiglas . Le comptage se fait en plaçant ce

support sur un photomultiplicateur, suivi d'un amplificateur et d'une échelle comptage.

En traçant les courbes représentatives de l'activité en fonction du temps, on voit qu'elle devient constante au bout d'un mois environ.

L'équilibre radioactif entre le Radium et ses descendants s'établit, mais l'activité est inférieure à la valeur théorique. Une explication valable semble être que le Radon diffuse hors du précipité, malgré les précautions prises.

Les auteurs affirment pouvoir doser 10^{-13} curies de Radium par litre.

IV - METHODES UTILISANT LES TECHNIQUES DES EMULSIONS NUCLEAIRES

Le passage d'un agent ionisant au sein d'une émulsion photographique détermine un noircissement dû à la réduction des grains d'argent de l'émulsion.

Quand il s'agit d'une particule alpha, l'observation microscopique montre l'existence de fines "traces", rectilignes, dont la longueur n'excède pas 50 microns et est proportionnelle à l'énergie de la particule qui lui a donné naissance.

Les particules β , les photons γ donnent des traces beaucoup moins denses, faciles à différencier de celles que donnent les particules α .

Le dénombrement, au microscope à immersion, des traces permet de déterminer le nombre de particules alpha

émises par unité de temps.

Des techniques basées sur ce principe ont été mises au point pour l'étude de l'activité des minerais d'uranium.

E. PICCIOTO a consacré de nombreux travaux à ces problèmes et a mis au point l'application de cette technique à la mesure de l'activité alpha des eaux.

On laisse évaporer entre deux couches d'émulsion des gouttes d'eau de volume connu. Au bout d'un temps plus ou moins long, suivant l'activité de l'eau, on dénombre au microscope les traces laissées par les particules alpha. L'identification qualitative est possible en mesurant la longueur des traces et en les classant suivant cette longueur. On réalise ainsi un spectre du rayonnement alpha émis par la source.

La mesure de l'activité se fait en comptant le nombre de traces émises en un temps déterminé. Le rendement de comptage est idéal, puisque les particules α sont vues sous un angle de 4π .

Le mouvement propre est pratiquement nul. Cependant ces techniques sont délicates à mettre en oeuvre ; leur application courante est difficile à envisager.

V - CONCLUSIONS

De l'examen des différentes techniques que nous venons d'étudier, il ressort qu'elles permettent de mesurer de très faibles activités de Radon et de Radium, avec une excellente précision.

Cependant, elles ont comme inconvénient d'être longues et complexes. La plus rapide permet d'effectuer 30 dosages par jour, mais nécessite un matériel considérable et des opérateurs rompus aux manipulations de laboratoires.

Aucune ne répond donc au but que nous nous sommes fixé.

Nous allons essayer de montrer que l'application de la spectrométrie gamma permet de résoudre notre problème.

SECONDE PARTIE

Parmi les descendants du Radium et du Radon, certains émettent en se désintégrant des photons γ , en particulier le $^{214}_{89}\text{Bi}$, qui fait partie du dépôt actif à évolution rapide.

Il est donc possible de doser ces éléments en détectant les rayons γ .

L'analyse des publications ayant pour objet la mesure de la radio-activité des eaux, ne nous a pas permis de trouver une méthode de dosage basée sur ce principe. Cependant de nombreux auteurs utilisent le comptage des photons γ pour doser le Radium et le Radon dans d'autres milieux.

M. CURIE, bien avant de connaître le schéma de désintégration du Radium et de ses descendants, a mis au point une telle méthode pour doser ces éléments radioactifs.

Le détecteur était une chambre d'ionisation à plateaux. On plaçait la substance à doser dans une ampoule cylindrique, scellée, de faibles dimensions, 2 cm de longueur

et 3 mm de diamètre. Les rayonnements émis par l'échantillon étaient filtrés par un écran de plomb de 1 cm d'épaisseur.

Dans ce cas, précise M. CURIE, "les rayons γ utilisés pour ces mesures ne proviennent pas du Radium lui-même, mais de son descendant le RaC".

La mesure de l'activité s'effectuait en comparant les courants d'ionisation émis par l'échantillon et par une source étalon de Radium ou de Radon. La mesure, par détection des rayons γ , est applicable au dosage du Radium, du Radon, du RaC.

Cependant, l'auteur note qu'avec une chambre d'ionisation "l'énergie utilisée sous forme de rayons γ , n'est en général, qu'une faible fraction de celle que peuvent fournir, dans une chambre analogue, les rayons α simultanément émis".

Il en résulte que les quantités de matières radioactives nécessaires au dosage sont plus importantes avec ce procédé de mesure.

Le contrôle des aiguilles de Radium à usage médical, qui ont des activités de plusieurs microcuries, se fait toujours de cette manière.

Au laboratoire, nous utilisons un calibrateur de source S.C. 56 TRACERLAB, permettant d'apprécier des teneurs en Radium égales ou supérieures à 1 microcurie par litre.

De tels appareils ne conviennent pas à la mesure des faibles activités de Radium et Radon des eaux, de l'ordre du millimicrocurie, leur sensibilité n'étant pas assez grande.

L'apparition des compteurs à scintillations a considérablement modifié le problème. Ces compteurs sont d'un emploi

facile ; ils ont de plus une meilleure efficacité de détection des rayons γ , que les chambres d'ionisation .

Dans certaines conditions, les impulsions électriques qu'ils délivrent, sont proportionnelles à l'énergie abandonnée par le photon ; il est possible en utilisant un analyseur d'impulsions, de connaître le ou les radioéléments présents. En comparant le spectre du rayonnement γ émis par la source, à ceux des radioéléments susceptibles d'être présents, on peut réaliser l'analyse qualitative de l'échantillon étudié.

Un biologiste Ch.W. MAYS (1963), a appliqué ce procédé de mesure à l'étude de la rétention du Radium et du Radon chez la souris, après injection intraveineuse.

Il place l'animal dans un compteur à scintillations, construit pour que l'angle sous lequel est vue la souris soit de 4π . Avec un spectromètre γ il compare les raies d'absorption totale des photons γ émis par l'animal et par une source étalon de Radium. La surface des raies étant proportionnelle aux activités présentes, en suivant leurs évolutions dans le temps, il évalue la rétention du Radium et du Radon.

N.D. BALYASNYL, L.I. BOLTNEVA (1963) ont mis au point une méthode de dosage du Radium et du Thorium des roches par un procédé analogue.

Leur appareil se compose d'un détecteur muni d'un scintillateur plastique, d'un spectromètre à trois canaux permettant d'explorer des énergies allant de 0,500 mev à 2,700 mev. Cet ensemble est installé à bord d'un avion.

Avec ce dispositif, ils étudient les teneurs en Radium et Thorium des roches d'un secteur géographique de 10 km de long sur 5,5 km de large ; l'altitude de vol est de 25 mètres.

Les mesures ainsi effectuées correspondent parfaitement à celles faites au sol par des méthodes radiochimiques.

=====

CHAPITRE I

APPLICATION DE LA SPECTROMETRIE γ AU DOSAGE DU RADIUM ET DU RADON DES EAUX

=====

I - PRINCIPES DE LA SPECTROMETRIE γ .

Schématiquement, un ensemble de spectrométrie comprend :

- Un scintillateur.
- Un détecteur de scintillations, le photomultiplicateur.
- Un analyseur d'impulsions.

1. - Le scintillateur

=====

Il en existe de deux sortes :

- Les uns, minéraux, sont constitués de mono-cristaux d'halogénure alcalin, comme l'iodure de Sodium.
- Les autres, d'un mélange de substances scintillantes et d'un plastique.

= Les cristaux d'Iodure de Sodium, grâce au numéro atomique élevé de l'Iode, possèdent un coefficient d'absorption massique élevé. Ils permettent donc une bonne absorption des photons γ , par l'un ou l'autre des phénomènes responsables de l'absorption : effet photoélectrique, effet compton, production de paires.

Le Thallium introduit à l'état de traces, a pour effet d'améliorer le rendement lumineux.

Le fait important à noter est que l'énergie lumineuse est proportionnelle à l'énergie abandonnée par les photons.

En pratique, ces détecteurs se présentent sous la forme de mono-cristaux de taille variable, allant de 2,5 à 10 cm de diamètre (1 à 4 pouces).

= Les scintillateurs en matière plastique sont constitués par une solution solide de matières fluorescentes, p,terphényl, tétra phénylbutadiène, dans du polystyrène par exemple.

Dans ces détecteurs, l'absorption des photons γ diffère de ce que nous avons vu pour les cristaux d'I Na (Tl), le numéro atomique moyen du plastique étant faible ; le phénomène responsable de l'absorption est surtout l'effet compton.

Il en résulte qu'avec ce type de détecteur on pourra déterminer la distribution compton du spectre obtenu avec les cristaux d'I Na (Tl). Ceci est d'un grand intérêt, comme nous le verrons dans l'étude des spectres, complexes.

Dans les détecteurs plastiques, l'énergie des électrons comptons est transformée en énergie lumineuse, grâce aux substances scintillantes qu'ils contiennent.

2. - Le photomultiplicateur

=====

Avec les deux types de détecteurs, l'absorption

des photons γ aboutit à l'émission de photons lumineux. Ces scintillations sont transformées en impulsions électriques par un photomultiplicateur analogue à celui que nous avons décrit précédemment.

Les impulsions produites ont une hauteur proportionnelle à l'énergie cédée par les photons qui leur ont donné naissance. Le rapport de proportionnalité est maintenu constant en alimentant la sonde par une haute tension continue et stabilisée.

3. - L'analyseur

=====

C'est un appareil qui compte les impulsions émises par le photomultiplicateur, et les classe en fonction de leur hauteur.

Le spectromètre monocanal, fig. ci-contre, possède deux circuits de détection d'impulsion :

- Le premier D.1, quand il reçoit une impulsion de hauteur supérieure ou égale à un seuil h_1 , délivre un signal S.
- Le second D.2, quand il reçoit une impulsion de hauteur supérieure à un seuil h_2 , délivre un signal S'.

Supposons $h_2 > h_1$

Les impulsions S sont transmises à l'échelle E, donc comptées à travers un circuit d'anticoïncidence A.C, quand ce circuit est ouvert.

Les impulsions S' sont appliquées à A.C et le ferment pendant leur durée.

Soit un photon qui abandonne l'énergie e dans un scintillateur. Il apparait une impulsion proportionnelle à e , à la sortie du photomultiplicateur, soit $h = k \times e$

- si $h < h_1$, D 1 n'est pas excité, il n'y a pas d'impulsion comptée par l'échelle.

- si $h_1 < h < h_2$, D 1 excité émet un signal qui traverse A.C, puisque $h < h_2$, D 2 n'émet pas de signal, AC est ouvert. Une impulsion est comptée par l'échelle.

- si $h > h_2$, A.C est fermé, le signal émis par D 1 ne parvient pas à l'échelle, il n'y a pas d'impulsion comptée.

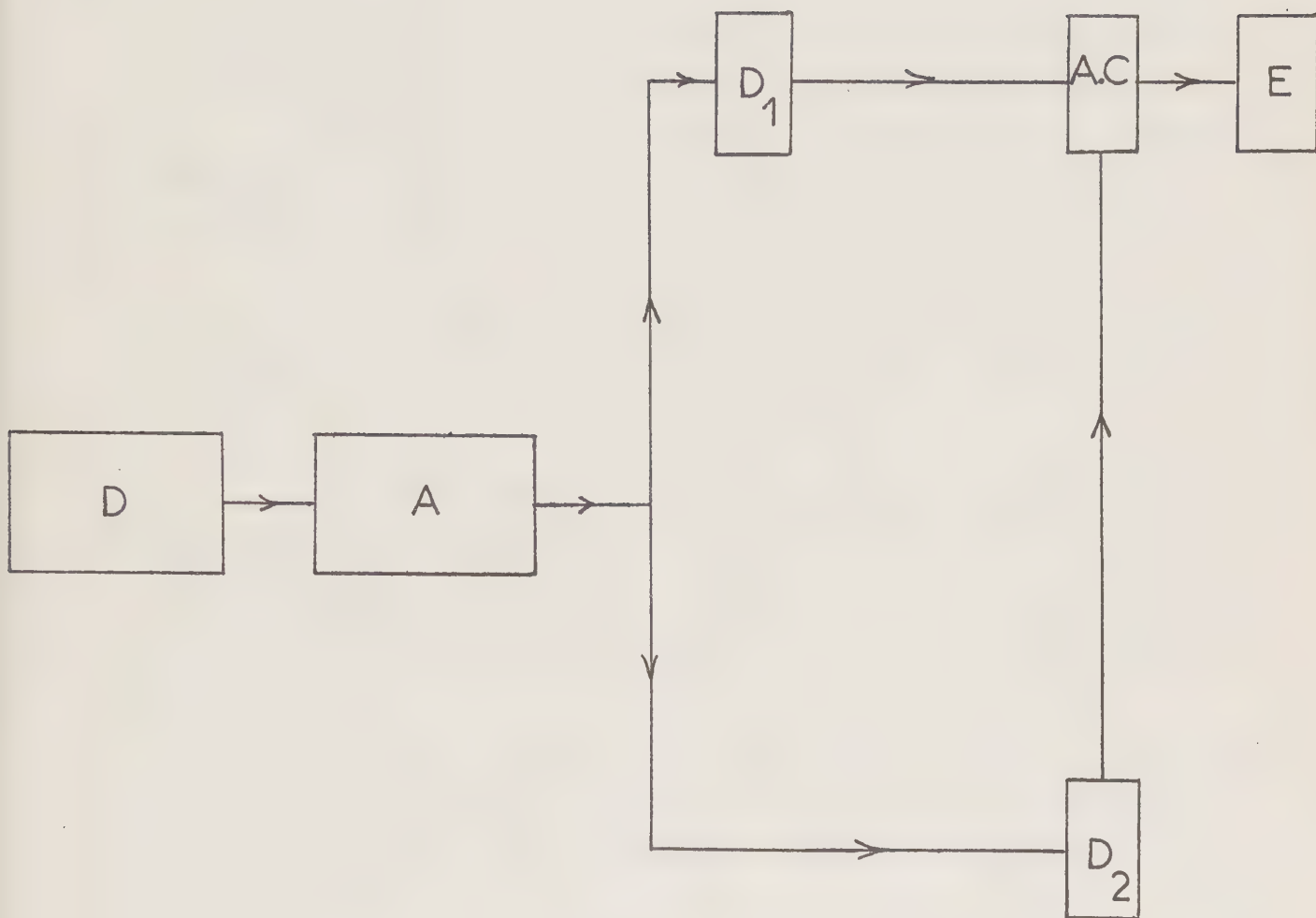
En définitive ne sont comptés que les photons ayant abandonné dans le scintillateur une énergie e telle que $e_1 < e < e_2$.

$$\begin{aligned} \text{En posant } e_1 &= k h_1 \\ e_2 &= k h_2 \end{aligned}$$

pour le spectromètre ainsi défini :

$$\begin{aligned} e_2 - e_1 &= e = \text{largeur du canal} \\ e_1 &= \text{seuil inférieur} \\ e_2 &= \text{seuil supérieur,} \end{aligned}$$

Les seuils inférieurs et supérieurs, les largeurs du canal sont exprimées en volts.



D Détecteur
A Amplificateur
 D_1 Discriminateur de seuil h_1
 D_2 Discriminateur de seuil h_2
A.C. Circuit d'anticoïncidence
E Echelle

II - SPECTRE DU RAYONNEMENT γ EMIS PAR UN OU PLUSIEURS

RADIOELEMENTS

1. - Radioélément émettant un rayonnement γ monoénergétique

Plaçons devant le détecteur à cristal I Na (Tl) une source de ^{137}Cs , par exemple. Enregistrons à l'aide d'un analyseur le spectre du rayonnement γ émis.

Pour cela, nous portons sur un graphique le nombre d'impulsions enregistrées par l'appareil, en fonction du canal où elles sont classées Fig. (12).

Le ^{137}Cs se désintègre en émettant des rayons β ; 92 % de ceux-ci possèdent une énergie de 0,511 Mev, 8 % une énergie maximum de 1,170 Mev.

En se désintégrant avec émission de rayons β de 1,170 Mev, ^{137}Cs donne naissance à l'élément stable ^{137}Ba .

Dans le deuxième cas, avec émission de rayon β de 1,170 Mev, apparaît ^{137}Ba dans un état excité. Cet élément retrouve son état fondamental, par émission de photons γ de 0,66 Mev Fig(12).

Le spectre de la figure (12), rend compte de l'absorption par le détecteur I Na (Tl) des photons γ de 0,660 Mev.

1 - A : est appelé pic d'absorption totale.

Il correspond à l'absorption complète, par le cristal d'I Na (Tl) de l'énergie de 0,660 Mev des photons γ .

2 - B : et tout ce qui lui fait suite excepté C, est appelé distribution compton. B est appelé plus particulièrement "front compton". Cette distribution compton correspond à l'absorption partielle de l'énergie de 0,660 Mev. Elle est continue de 0 à la valeur E_c et elle définit la position de B.

D'autres pics peuvent apparaître, pic d'annihilation, pics parasites, provoqués par l'absorption de photons X ou γ dus à l'interaction des photons émis par la source, avec les matériaux qui l'entourent.

Ce spectre est celui que l'on obtient en pratique ; théoriquement, les pics devraient être des raies. Il n'en est pas ainsi car, depuis l'émission des photons γ jusqu'aux impulsions électriques, les phénomènes observés sont aléatoires ; leurs valeurs oscillent autour d'une valeur moyenne. Ces fluctuations statistiques se traduisent par l'apparition, à la place des raies, de pics correspondant à des courbes en cloche de forme gaussienne.

L'appareil donne, pour chaque radioélément émettant des photons γ monoénergétiques, un spectre schématiquement composé de deux parties :

- Le pic d'absorption totale,
- La distribution compton.

2. - Radioélément émettant plusieurs rayons γ monoénergétiques =====

Si le radioélément émet plusieurs photons γ monoénergétiques, le spectre présentera plusieurs pics d'absorption totale, et une distribution compton résultante de celle affectant chaque pic. Fig. (13).

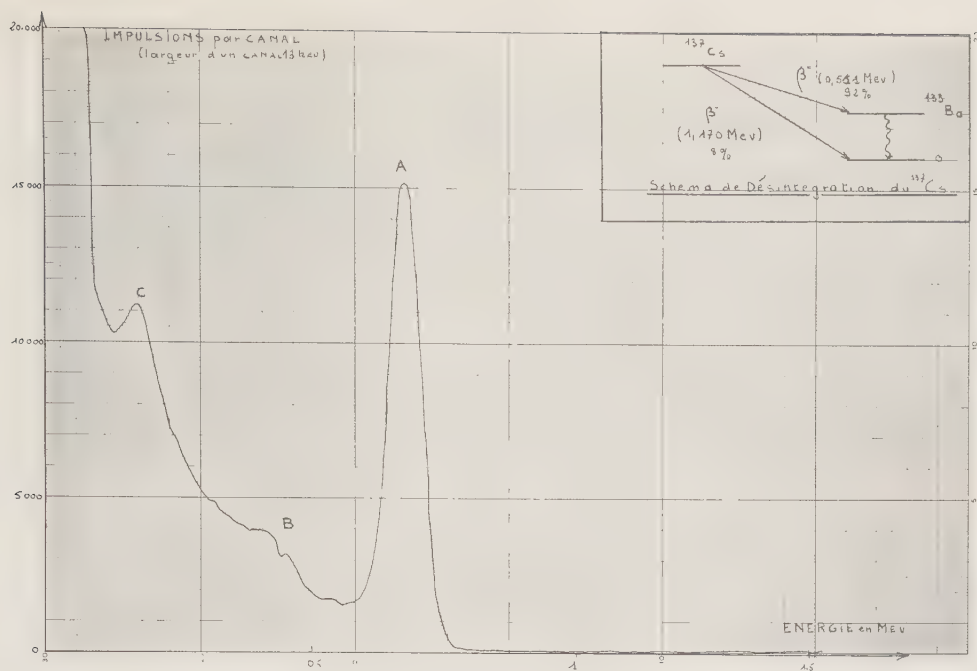


FIGURE : 12

Spectre γ obtenu avec une source de ¹³⁷Cs, à l'aide du détecteur à Cristal INa(Tl).

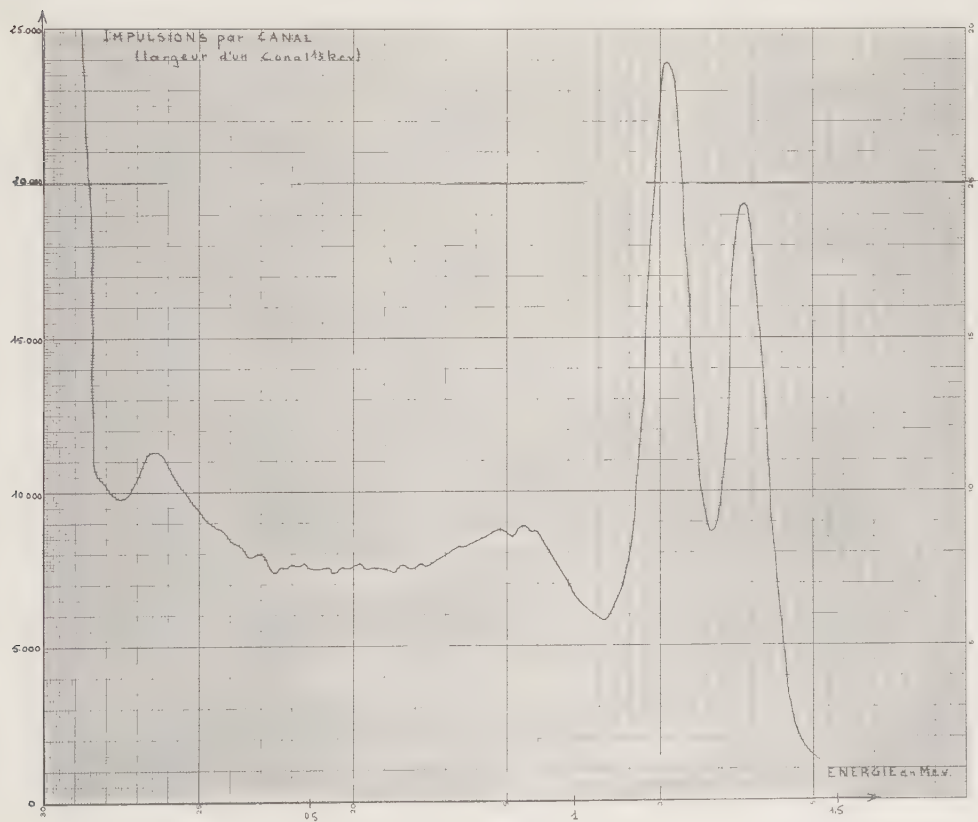
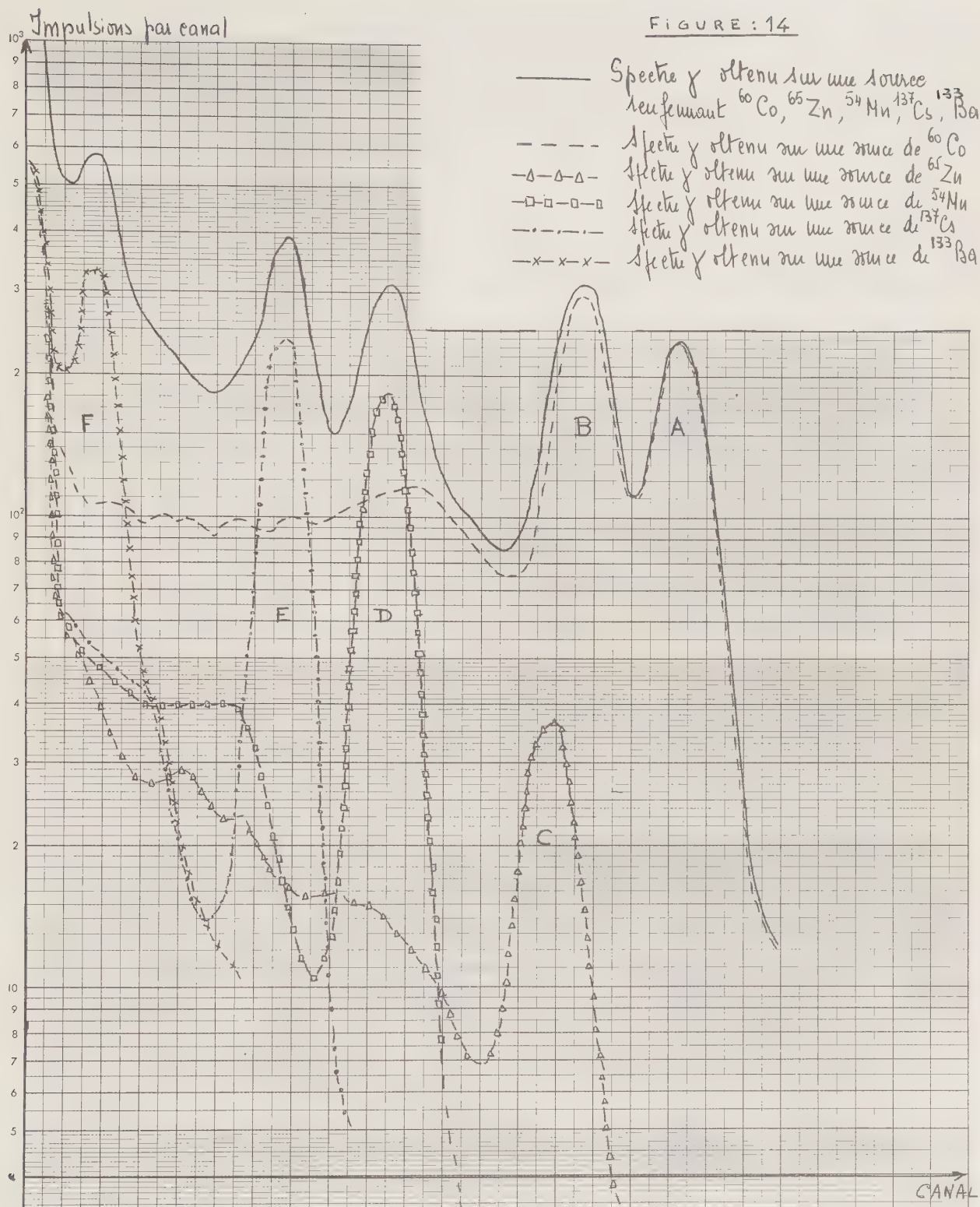


FIGURE : 13

Spectre γ obtenu avec une source de ⁶⁰Co, à l'aide du détecteur à Cristal INa(Tl).

FIGURE: 14



3. - Mélange de radioéléments émetteurs γ .

=====

Quand on place devant le détecteur I Na (Tl) un mélange de radioéléments émetteurs γ , on obtient un spectre complexe. Fig. (14).

Ce spectre résulte de la totalité des impulsions produites par les photons émis par chacun des radioéléments, dans chaque canal.

On voit que le pic d'absorption totale des photons γ les plus énergiques n'est pas perturbé. Il n'en est pas de même pour les autres pics ; les distributions comptions des pics les précédant sont enregistrées dans les mêmes canaux, au point de les masquer complètement parfois.

Ainsi, le pic d'absorption totale des photons de 1,11 Mev émis par le ^{65}Zn , n'apparaît pas, cet élément pourra ne pas être identifié dans un mélange où il est présent.

Pour lever cette difficulté, de nombreux procédés ont été mis au point ; nous allons étudier celui que Ch.A. BIZOLLON a employé.

L'auteur a appliqué le principe de la technique de PEIRSON, basée sur l'utilisation d'un deuxième détecteur n'enregistrant que les distributions comptions. Le détecteur est en matière plastique où sont mêlées des substances scintillantes. Nous avons étudié plus haut ce type d'appareil.

Pour étudier un spectre complexe, on enregistre d'abord le spectre obtenu avec le cristal I Na (Tl), en un temps "t" ; puis celui que donne le détecteur plastique pendant le même temps. La soustraction des deux spectres ne laisse subsister que les pics d'absorption totale et eux seuls.

L'identification des radioéléments présents est alors possible avec précision ; de même l'activité de chaque nuclide, qui est proportionnelle à la surface du pic d'absorption totale des photons γ qu'il émet, est mesurable dans de bonnes conditions.

III - DESCRIPTION DE L'ENSEMBLE DE MESURE

Cet ensemble a été mis au point pour les mesures directes sur les liquides, par Ch.A. BIZOLLON.

L'auteur a établi les meilleures conditions de mesure en étudiant la géométrie de l'échantillon, le bruit de fond, l'efficacité du système de comptage.

1. - Les détecteurs

=====

Deux sondes à scintillations sont utilisées :

- La première est constituée par un cristal d'I Na (Tl) de 7,5 cm de diamètre sur 7,5 cm de hauteur.

Cette sonde, fabriquée par les établissements HARSHAW est construite de manière à posséder un bruit de fond le plus bas possible. Pour cela la teneur en potassium est inférieure à 1 p.p.m ; la liaison cristal d'I Na (Tl) photomultiplicateur (P.M.) est assurée par un deuxième cristal d'I Na, absorbant les rayons γ émis par le potassium et réduisant l'angle sous lequel le P.M. "voit" le gros cristal.

La résolution en énergie est excellente, ce qui permet d'étudier des pics d'absorption totale correspondants à des énergies très voisines.

- La deuxième sonde est constituée par un scintilla-
teur plastique de 11 cm de diamètre sur 11 cm de hauteur. Ce
détecteur enveloppé de plexiglas noir est accolé à un P.M.
par l'intermédiaire de graisse siliconée.

L'usage de cette sonde, pour débarrasser les spectres
des distributions comptons, demande l'ajustement aussi parfait
que possible entre le spectre qu'elle fournit et la distribu-
tion compton donnée par le détecteur d'I Na (Tl).

Un ajustement en comptage définit les positions
respectives des deux sondes, pour qu'en un temps donné, les
distributions comptons données par les deux détecteurs soient
égales.

Ces réglages sont délicats ; on opère par essais
successifs pour les réaliser.

2. - L'analyseur à 128 canaux R C L

=====

C'est un spectromètre transistorisé à 128 canaux.
L'appareil travaille ainsi :

Quand une impulsion est détectée, sa hauteur est
mesurée et une unité est ajoutée dans le canal d'énergie
correspondante.

Pendant le temps consacré à la mesure et au classe-
ment, l'appareil n'enregistre pas, c'est le temps mort qui
est déduit automatiquement du temps de comptage. Le temps de
mesure est prédéterminé de 0,12 secondes à 210 minutes, avec
possibilité de multiplications par un facteur 2, 4, 8.

L'affichage du spectre est graphique et numérique.

3. - Le récipient porte-échantillon .

=====

Il est constitué par une bonbonne sphérique en polyvinyle, fabriquée par les établissements "Les Plastiques et Le Plomb dur" à LYON. Fig. 16

Deux logements cylindriques pénétrant à son intérieur servent à placer les sondes. La forme sphérique a été choisie car elle permet une répartition uniforme de l'échantillon autour des détecteurs.

Le volume doit être assez grand, car les activités à mesurer sont faibles ; cependant l'autoabsorption limite ce volume. En définitive, la capacité de 10 litres a été retenue, car elle offre des conditions satisfaisantes de détection et de comptage pour un temps de mesure assez court.

La position des sondes a été définie pour qu'avec de bonnes conditions de détection, la résolution en énergie et l'ajustement des distributions soient acceptables.

4. - Blindage. Mouvement propre

=====

La bonbonne est placée dans une enceinte de plomb constituée de briques à chevrons d'épaisseur de 5 cm. Fig. 15

Les dimensions de la chambre sont assez importantes pour que les parois du porte-échantillon soient à 10 cm de celles du blindage. Cette disposition évite la diffusion des photons γ par les briques de plomb.

L'épaisseur des parois de 5 cm du blindage assure un mouvement propre suffisamment faible et une masse de plomb pas trop importante.

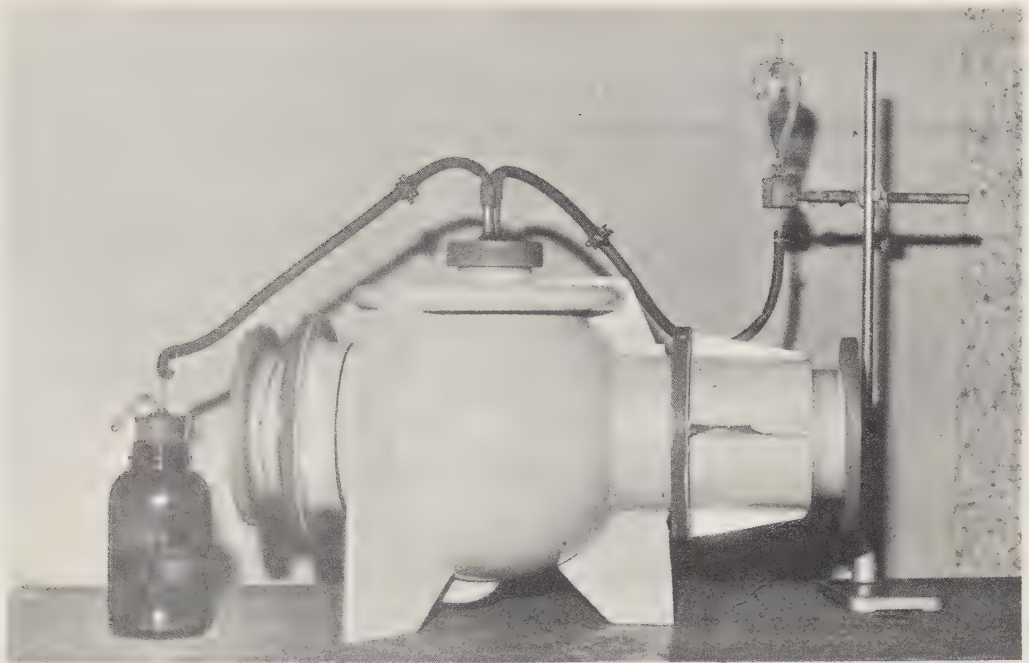


FIGURE : 16

Réceptient contenant l'échantillon d'eau à analyser.

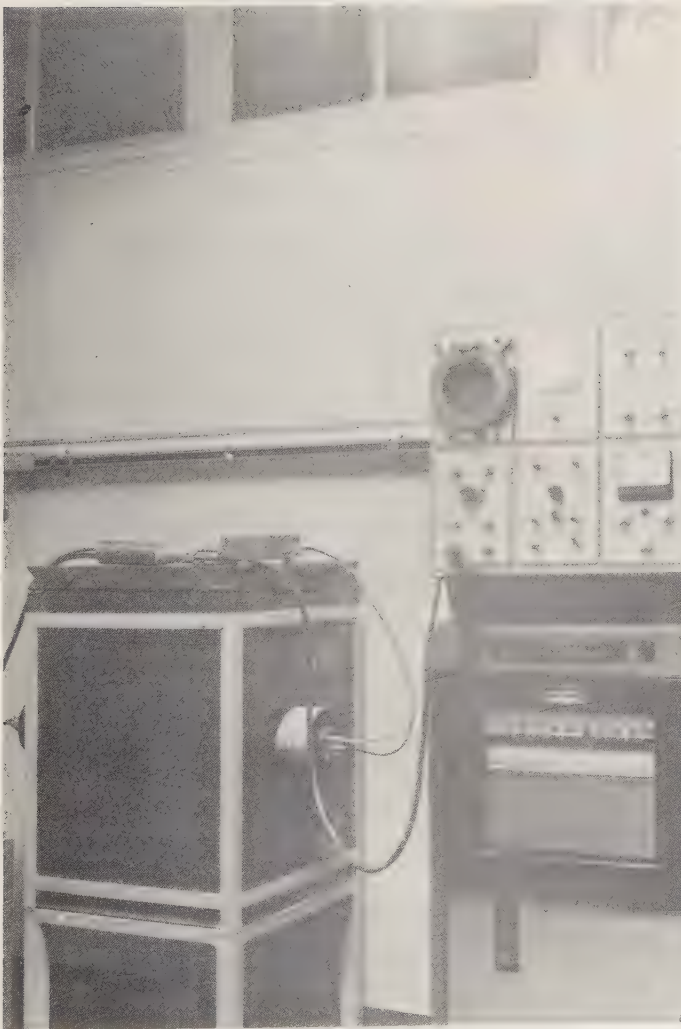


FIGURE : 15

Ensemble de Comptage

- A droite : Le Spectromètre.
- A gauche : La bombonne dans le coffre blindé.

IV - DETERMINATION DES ACTIVITES PAR SPECTROMETRIE γ .

1. - Etalonnage du spectromètre en Energie

=====

Quand on enregistre le spectre du rayonnement émis par un radioélément ou un mélange de radioéléments inconnus, il faut pouvoir faire la correspondance entre le numéro du canal et l'Energie cédée par le photon.

Pour cela il faut avoir au préalable étalonné l'appareil en énergie. Cet étalonnage est réalisé en plaçant devant le détecteur I Na (Tl) une série d'émetteurs γ dont les photons ont des énergies croissantes par exemple ^{133}Ba , ^{137}Cs , ^{60}Co .

La droite d'étalonnage est obtenue en portant l'Energie des photons en fonction du canal où se loge le sommet du pic d'absorption totale. Fig. (18).

Cette droite permet de connaître l'énergie des photons correspondants aux pics observés dans le spectre étudié, de déterminer donc les radioéléments présents.

2. - Spectre du rayonnement γ émis par ^{226}Ra et ses descendants

=====

Plaçons dans la bonbonne une solution de Radium d'activité inconnue. Fermons hermétiquement le récipient, sans emprisonner de bulles d'air, afin que le Radon ne puisse diffuser.

L'équilibre radioactif entre le Radium et ses descendants a été rompu lors des manipulations de mise en bonbonne, car le Radon a diffusé hors de l'eau. Nous laissons l'équilibre se rétablir, ce qui se réalise en 30 jours environ.

Enregistrons le spectre de cette solution avec le détecteur I Na (Tl), en 210 minutes.

Le spectre obtenu est présenté fig. (17). Il est composé de pics plus ou moins importants. Avec la droite d'étalonnage que nous avons tracée précédemment nous pouvons définir l'énergie des photons γ émis par la source.

Le tableau ci-dessous compare ces valeurs à celles que donnent les tables.

On voit qu'entre 0 et 1,400 Mev, l'accord est satisfaisant ; au-dessus nous n'avons plus de pic dans le spectre enregistré, ceci provient du gain de l'analyseur choisi pour la mesure, qui ne permet d'étudier que cette bande d'Energie.

Energie des γ détectés	Energie des γ émis par le ^{226}Ra et ses descendants	
	:	
0,602 Mev	:	0,609 Mev
	:	
0,780 Mev	:	0,790 Mev
	:	
0,930 Mev	:	0,920 Mev
	:	
1,110 Mev	:	1,130 Mev
	:	
1,360 Mev	:	1,390 Mev
	:	

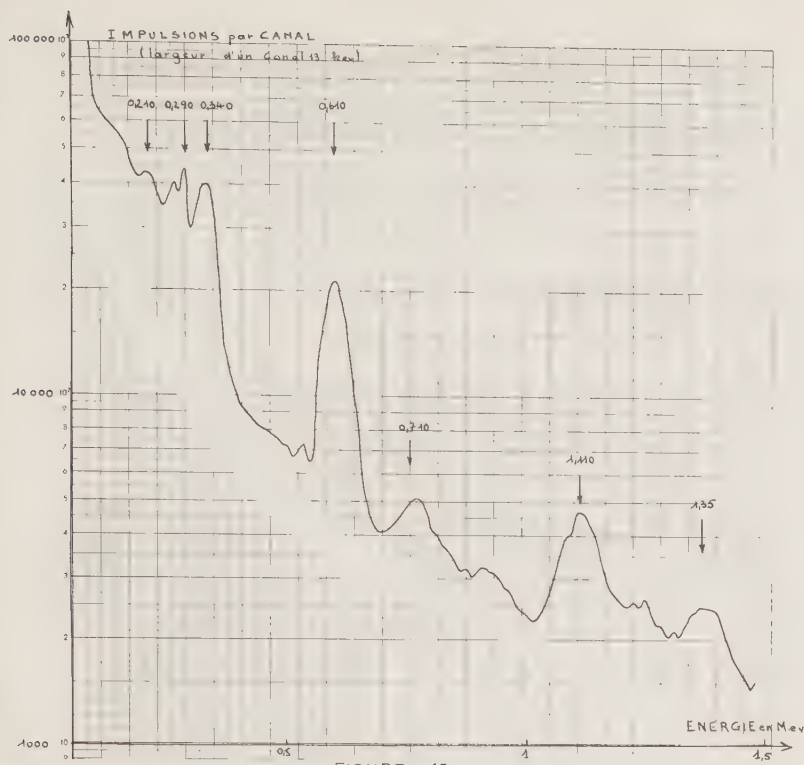


FIGURE 17

Spectre γ obtenu avec une solution de Radium à l'aide du détecteur à Cristal INa(Tl).

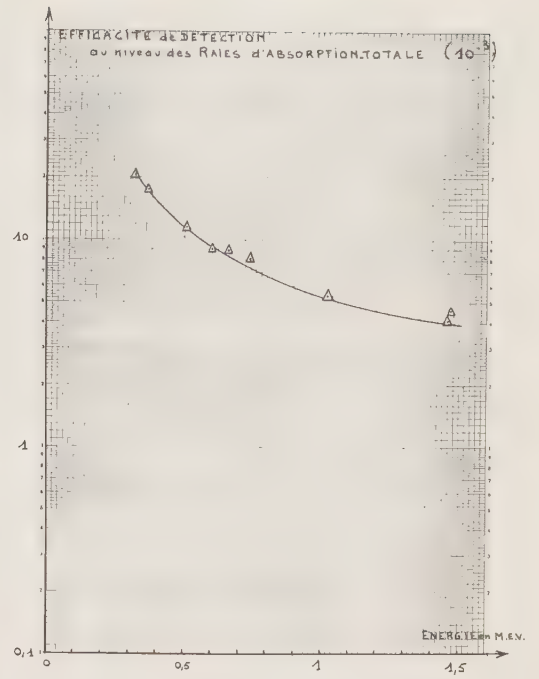
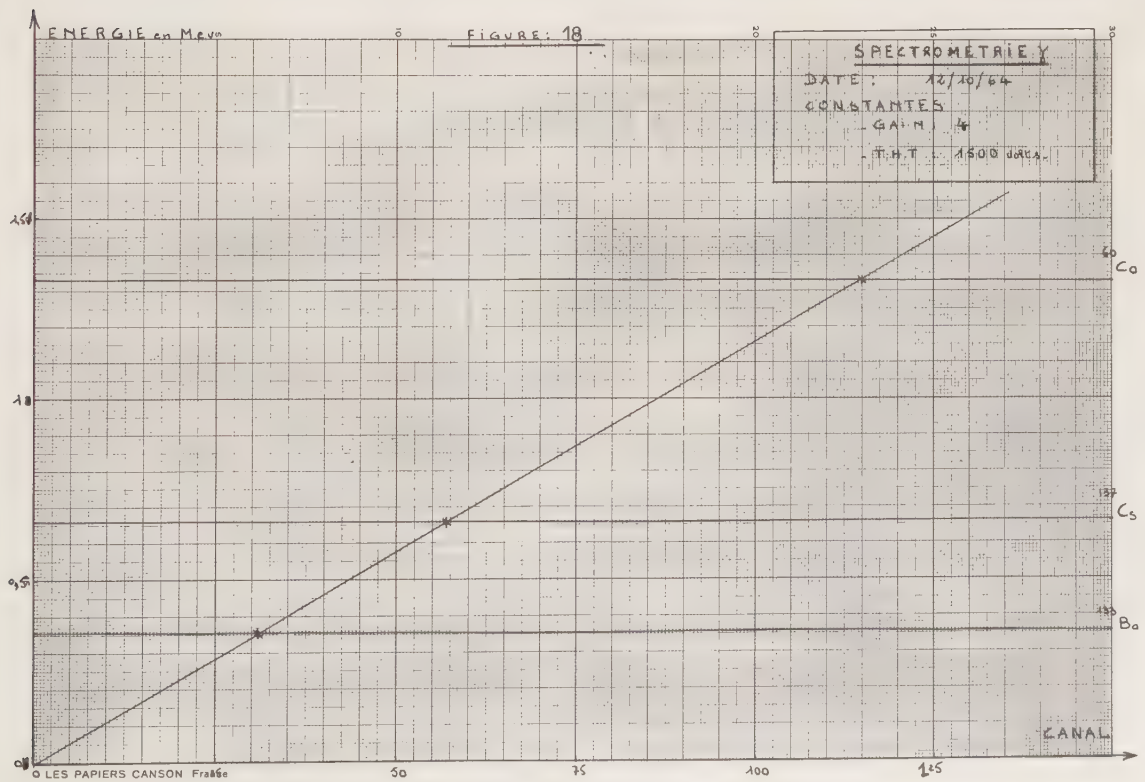


FIGURE 19

Efficacité de détection des Photons γ en fonction de leur énergie, avec le Cristal INa(Tl).



3. - Détermination de l'activité du Radium et du Radon présents

=====

3.1. - Choix d'un pic d'absorption totale

Notre choix se porte vers le pic le plus important et le mieux défini, c'est-à-dire celui de 0,609 Mev.

Nous avons vu en étudiant les schémas de désintégration, que les photons γ correspondant à ce pic d'absorption totale proviennent de $^{214}_{83}\text{Bi}$.

Leur abondance relative, par rapport aux autres photons γ émis, est grande (19 photons de 0,609 Mev émis pour un photon de 2,200 Mev). Cela explique pourquoi l'on peut isoler facilement ce pic dans le spectre total.

Il faut noter, d'autre part, que le $^{214}_{83}\text{Bi}$ sera toujours présent dans une eau que celle-ci renferme du Radium et du Radon en équilibre, ou bien uniquement du Radon dissous.

En étudiant la surface de ce pic, nous pouvons déterminer l'activité du RaC, et par là, celles du Radium et du Radon.

3.2. - Détermination de l'activité du RaC

La surface du pic d'absorption totale des photons γ de 0,609 Mev, est proportionnelle à l'activité du RaC.

Pour déterminer cette activité, on peut procéder de deux façons :

= Si on possède une solution étalon de Radium, il suffit de faire une mesure comparative entre cette solution et l'échantillon à analyser. La hauteur respective du pic de 0,609 Mev, obtenue dans les deux cas, permet de connaître l'activité de l'échantillon.

= Si on ne possède pas de solution étalon, on peut

déterminer l'activité du RaC à partir du nombre d'impulsions présentes dans le pic de 0,609 Mev en connaissant :

- L'efficacité de détection des photons γ de 0,609 Mev
- Le nombre de photons γ de cette énergie, émis par désintégration de RaC.

3.3. - Comparaison de la hauteur maxima des pics d'absorption totale des photons γ de 0,609 Mev

C'est la façon la plus simple de procéder. On compare la hauteur des pics d'absorption totale évaluée en impulsions/minute après déduction du mouvement propre du détecteur I Na (Tl) à leurs niveaux.

Si : N_e = hauteur en impulsions/minute du pic donnée par la solution étalon.

A_e = l'activité en curie/litre du RaC de cette solution.

N_m = hauteur en impulsions/minute du pic, donnée par l'échantillon à mesurer, en opérant sur le même volume de solution ;

on aura :

$$\text{Activité de l'échantillon en curie/litre de RaC} = \frac{A_e \times N_m}{N_e}$$

En pratique, on opère de la façon suivante :

- On enregistre le mouvement propre du détecteur I Na (Tl), pendant un temps t , en plaçant le détecteur dans le logement de la bonbonne, celle-ci étant pleine d'eau distillée.

- On enregistre le spectre de la solution étalon placée dans la bonbonne pendant le même temps ; N_e est calculée par soustraction du mouvement propre.

- On enregistre le spectre de l'échantillon placé à son tour dans la bonbonne. Par soustraction du mouvement propre, on détermine N_m .

Il suffit d'appliquer la formule établie plus haut pour connaître l'activité présente.

On note que le rapport $\frac{A_e}{N_e}$ est déterminé une fois pour toutes à condition que les N_e constantes de l'ensemble de comptage : gain, ~~déplacement~~, résolution, efficacité, géométrie et temps de comptage ne varient pas.

3.4. - Calcul de l'activité à partir du nombre d'impulsions logées dans la surface du pic d'absorption totale des photons γ de 0,609 Mev

3.4.1. - Détermination de la surface du pic

Les impulsions provenant de l'absorption totale des photons γ de 0,609 Mev par le détecteur, ont été classées par l'analyseur, dans un pic dont le sommet est situé dans un canal déterminé. La surface de ce pic est assimilable à celle d'un rectangle, à un coefficient près, introduit pour tenir compte de l'assymétrie de la courbe du côté des basses énergies.

$$S = k \cdot h \cdot l$$

h = hauteur maxima du pic exprimée en impulsions/minute .

l = largeur à mi hauteur en canaux.

k = 1,07.

Dans cette surface des impulsions ne sont pas dues à l'absorption des photons γ de 0,609 Mev, ce sont :

- Les impulsions du mouvement propre du détecteur I Na (Tl) à ce niveau.
- Les impulsions appartenant aux distributions compton des spectres donnés par les photons plus énergiques que celui de 0,609 Mev
(0,790 Mev ; 0,920 Mev ; 1,130 Mev ; 1,390 Mev)
qui sont enregistrés à ce niveau.

Il faut donc enlever ces impulsions qui perturbent la véritable surface du pic de 0,609 Mev.

Pour cela il suffit de soustraire du spectre obtenu avec le cristal I Na (Tl) la distribution compton obtenue avec la sonde à scintillateur plastique, déduction faite des mouvements propres.

On obtient ainsi un pic ne contenant que les impulsions dues à l'absorption totale des photons de 0,609 Mev.

3.4.2. - Détermination du nombre de photons γ de 0,609 Mev émis par la source

Pour passer du nombre d'impulsions au nombre de photons, il faut connaître l'efficacité de détection des

photons γ en cause. Ce coefficient d'efficacité $\mathcal{E}$, est égal à :

$$\mathcal{E} = \frac{\text{nombre d'impulsions/unité de temps.}}{\text{nombre de photons/unité de temps.}}$$

Ce rapport a été déterminé expérimentalement par Ch.A. BIZOLLON. L'auteur a introduit dans la bonbonne des solutions étalons de radioéléments dont le nombre de photons γ émis par unité de temps est connu.

Il a effectué ces mesures avec :

$^{51}\text{C}_2$, ^{131}I , ^{106}Ru - ^{106}Rh , ^{95}Zr - ^{95}Nb , ^{65}Zn , ^{40}K .

Ceci lui a permis de construire la courbe représentative du coefficient d'efficacité de détection $\mathcal{E}$, en fonction de l'énergie des photons détectés. Fig. (19)

Ainsi pour les photons de 0,609 Mev, $\mathcal{E}$ est de $9 \cdot 10^{-3}$.

Grâce à ce coefficient, on peut déterminer le nombre de photons γ de 0,609 Mev émis par le RaC présent dans l'échantillon.

3.4.3. - Détermination du nombre de désintégrations de RaC ----- dont la source est le siège -----

C'est l'étude du schéma de désintégration qui permet de déterminer le nombre de désintégrations, quand on connaît le nombre de photons émis par la source, pendant un temps donné.

Le rapport $\frac{\text{nombre de photons d'E déterminée}}{\text{nombre de désintégrations}}$ est déduit

de cette étude.

Le RaC possède un schéma de désintégration complexe.

La détermination du rapport défini plus haut est très difficile à faire. On a vu qu'il y a 18 photons γ émis et leurs abondances relatives ne sont pas connues avec précision. Cela entraîne des divergences entre les auteurs qui ont déterminé le nombre de photons de 0,609 Mev émis par désintégration.

T.P. KOHMAN donne comme valeur 0,293 photons de 0,609 Mev émis par désintégration de RaC.

BACKENSTOSS et WOHLIEBEN donne $0,0248 \pm 0,012$ photons de 2,43 Mev émis pour une désintégration de RaC.

Or, N.A. HALLDEN donne 0,5 photons de 2,43 Mev émis pour 9 photons de 0,609 Mev. On en déduit qu'il y a 0,446 photons de 0,609 Mev émis par désintégration, soit 50 % de plus que pour T.P. KOHMAN.

Il est difficile de choisir entre deux valeurs aussi différentes ; en étudiant les solutions étalons de Radium, nous verrons laquelle nous permet de retrouver par le calcul, l'activité présente dans la bonbonne.

3.4.4. - Détermination de l'activité du Radon et du ----- Radium présents -----

Ayant déterminé l'activité du RaC, deux cas sont à considérer :

= Le Radon est en équilibre avec le Radium dans l'eau. Nous avons vu en étudiant les équilibres radioactifs que l'activité du Radon est égale à 1 % près, à celle du RaC ;

que celle du Radium est égale à l'activité du Radon.

Dans ce cas, la mesure de l'activité du RaC permet de connaître l'activité du Radium et du Radon présents dans l'eau.

= Le Radon n'est pas en équilibre avec le Radium. La mesure de l'activité du RaC permet d'atteindre à 1% près l'activité du Radium.

Cet équilibre de régime est caractérisé par la décroissance des activités avec la période du Radon ; au bout d'un temps suffisamment long, le Radon sera en équilibre avec le Radium s'il y en a. On est ramené au cas précédent. Si notre ensemble de comptage nous permet de mesurer de très faibles activités, il nous sera possible, après avoir dosé le Radon dissous, d'apprécier les traces de Radium présent dans cette eau de source.

3.5. - Erreur sur la mesure. Activité minimale détectable.

Pour calculer la surface du pic d'absorption totale des photons γ 0,609 Mev, on effectue les opérations suivantes :

- Enregistrement pendant 210 minutes des impulsions détectées par la sonde I Na (Tl), exposée aux rayonnements γ émis par l'eau à analyser.
Soit B_I ce nombre.
- Enregistrement pendant 210 minutes des impulsions détectées par la sonde plastique placée devant la même eau.
Soit B_C ce nombre.

- Déduction de B_I et de B_C des mouvements propres correspondants M_I et M_C . On obtient ainsi N_I et N_C , nombre net d'impulsions détectées par les deux sondes.
- Soustraction de N_I et de N_C . On obtient N_R , nombre d'impulsions de la surface du pic d'absorption totale des photons de 0,609 Mev.

On peut écrire :

$$N_R = N_I - N_C$$

Ou

$$N_R = (B_I - M_I) - (B_C - M_C)$$

L'erreur commise sur N_R provient uniquement des fluctuations statistiques des désintégrations.

Dans la détermination de la surface du pic d'absorption totale des photons γ de 0,609 Mev, l'erreur sur N_R est :

$$\sigma_{N_R} = \sqrt{B_I + B_C + M_I + M_C}$$

Pour que N_R soit connu avec une erreur inférieure ou égale à 20 % et ceci dans 95 % des cas, il faut que :

$$N_R \geq 10 \sigma_{N_R}$$

Cherchons quelles conditions vérifient cette relation ; elles nous permettront de déterminer l'activité minimale détec-

table avec notre ensemble de mesure.

Pour ceci écrivons :

$$N_R \geq 10 \sqrt{B_I + B_C + M_I + M_C}$$

Elevons les deux membres au carré :

$$N_R^2 \geq 100 (B_I + B_C + M_I + M_C) \quad (1)$$

Exprimons B_I et B_C en fonction de M_I , M_C , N_I , N_C ;

On sait que $B_I = N_I + M_I$

$$B_C = N_C + M_C$$

Le terme $B_I + B_C$ devient :

$$B_I + B_C = N_I + N_C + M_I + M_C$$

Les valeurs de N_I , N_C sont inconnues, mais elles sont dans un rapport constant :

$$\frac{N_C}{N_I} = p, \text{ avec } p < 1$$

De même N_I et N_R sont dans un rapport constant q tel que :

$$\frac{N_I}{N_R} = q, \text{ avec } q < 1$$

L'inégalité (1) s'écrit :

$$N_R^2 \geq 100 \left[(1 + p)N_I + 2(M_I + M_C) \right]$$

Ou encore :

$$N_R^2 \geq 100 \left[q(1 + p)N_R + 2(M_I + M_C) \right]$$

Groupons tous les termes dans un seul membre :

$$N_R^2 - 100 q(1 + p)N_R - 200(M_I + M_C) \geq 0$$

Cette inéquation du second degré est de la forme :

$$aN_R^2 + b N_R + C \geq 0$$

Soient N'_R et N''_R les valeurs de N_R qui annulent le polynôme du premier membre.

Des considérations élémentaires montrent que :

$$a N_R^2 + b N_R + C \geq 0 \quad \text{Si}$$

$$1) \quad N_R \leq \frac{-b - \sqrt{b^2 - 4ac}}{2a}$$

$$\text{avec } N_R < 0$$

$$2) \quad N_R \geq \frac{-b + \sqrt{b^2 - 4ac}}{2a}$$

$$\text{mais alors } N_R > 0$$

N_R , qui représente un nombre d'impulsions dans le pic, ne peut être que positif ; la seule solution de l'inéquation qui puisse être retenue est :

$$N_R \geq \frac{-b + \sqrt{b^2 - 4ac}}{2a}$$

L'activité minimale détectable est :

$$N_R = \frac{-b + \sqrt{b^2 - 4ac}}{2a}$$

soit :

$$N_R = \frac{100q (1 + p) + \sqrt{100^2 q^2 (1 + p)^2 + 800 (M_I + M_C)}}{2}$$

M_I , M_C , mouvements propres des deux détecteurs au niveau du pic, sont constants.

Avec le blindage utilisé et un temps de comptage de 210 minutes, leur somme est égale à 100.000.

p et q sont également constants ;

$$p = \frac{N_C}{N_I}$$

C'est le rapport entre le nombre d'impulsions N_C dues aux distributions compton des pics d'absorption totale des photons γ plus énergiques que celui de 0,609 Mev, dans le spectre des descendants du Radium, et le nombre d'impulsions N_I du pic d'absorption totale des photons de 0,609 Mev.

On comprend que ce rapport soit constant quand ces éléments sont en équilibre de régime

Il en est de même pour $q = \frac{N_I}{N_R}$

Dans les conditions de blindage, de temps de comptage, que nous avons adoptées p et q ont pour valeurs :

$$p = 0,30$$

$$q = 1,36$$

La relation devient :

$$N_R = \frac{100 (1 + 0,30) + \sqrt{100^2 \times 1,36^2 \times (1 + 0,30)^2 + 100^2 \times 8000}}{2}$$

Elle se simplifie et s'écrit :

$$N_R = 50 \left[(0,30 + 1) \times 1,36 + \sqrt{(0,30 + 1)^2 \times 1,36^2 + 8000} \right]$$

Le terme $(0,30 + 1)^2 \cdot 1,36^2$ est négligeable devant 8000, cette approximation introduisant une erreur inférieure ou égale à 1 %.

$$N_R = 50 \left(1,77 + \sqrt{8000} \right)$$

$$N_R = 4.600 \text{ impulsions/210 minutes}$$

$$N_R = 21,90 \text{ impulsions/minute}$$

L'étude des solutions étalons de Radium nous permettra de fixer la valeur du nombre de photons de 0,609 Mev émis par désintégration de RaC ; nous déterminerons alors la valeur de l'activité minimale détectable en désintégrations par minute.

CHAPITRE II

ETUDE DES SOLUTIONS ETALONS DE RADIUM

=====

I - PREPARATION DES SOLUTIONS

Ces solutions ont été préparées à partir de chlorure de Radium fourni par THE RADIOCHEMICAL CENTRE d'AMERSHAM.

Ce sel de Radium est contenu dans une ampoule scellée, son poids est de 10^{-4} grammes, son activité de 86,4 microcuries de Radium.

Nous avons préparé la solution A en ouvrant l'ampoule et en la plongeant dans 990 ml d'eau distillée auxquels on ajoute 10 ml de Cl_2Ba servant d'entraîneur. Cette solution A contient :

0,0864 microcuries de Radium/ml ;

Par dilution au 1/100 de cette solution mère nous avons préparé une solution B contenant :

0,000864 microcuries de Radium/ml.

Ces deux solutions nous ont servi à étalonner l'ensemble de comptage.

II - MISE EN BONBONNE DES ECHANTILLONS

Nous ajoutons un certain volume de A ou B à une solution de Cl_2Ba , très diluée, placée dans la bonbonne. Le mélange est brassé pour le rendre homogène. Ces opérations ont pour effet de faire diffuser une partie du Radon dissous dans l'eau.

Pour effectuer une mesure, il faut attendre que l'équilibre radioactif entre le Radium et ses descendants se rétablisse. Pendant ce temps le Radon ne doit plus pouvoir diffuser; il est donc indispensable de fermer la bonbonne de façon hermétique, sans emprisonner de bulles d'air.

Nous avons mis au point un dispositif destiné à chasser les bulles d'air encore présentes après la fermeture de la bonbonne. Fig. (20 et 21).

Le bouchon de la bonbonne est muni de deux tubulures T_1 et T_2 qui le traversent.

- T_1 plonge au sein du liquide,
- T_2 s'arrête à la partie supéro-interne du bouchon.

La tubulure T_1 est reliée au flacon F, lui-même alimenté en air comprimé par un compresseur.

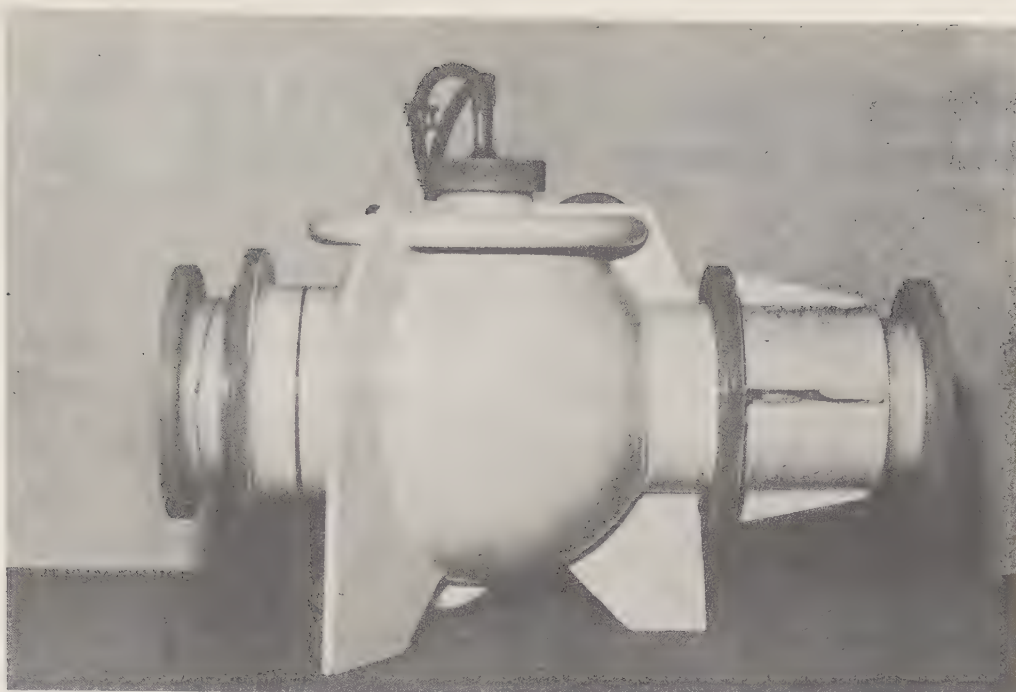


FIGURE : 20

Dispositif servant à remplir et fermer le récipient contenant l'échantillon à mesurer, sans emprisonner de bulles d'air.

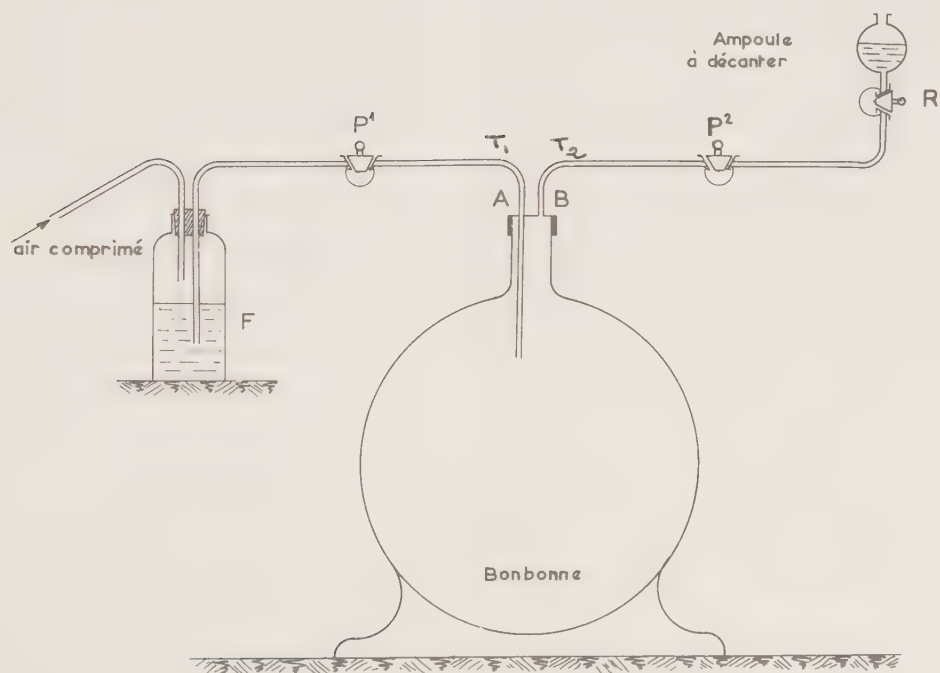


Figure .21 Schema explicatif du montage de la figure : 20

La tubulure T_2 est reliée à l'extrémité inférieure d'une ampoule à décanter pleine d'eau, permettant l'évacuation des bulles d'air.

Deux pinces P_1 et P_2 posées sur les deux tubulures servent à les obturer.

La partie inférieure de l'ampoule à décanter est munie d'un robinet R.

Le mode opératoire est le suivant :

1) Après avoir rempli la bonbonne, on ferme le bouchon et on établit les connexions avec le flacon F et l'ampoule à décanter.

2) P_1 et P_2 sont ouvertes. On met le compresseur en marche et on ouvre R.

L'air comprimé fait passer l'eau de F dans la bonbonne. Cette eau chasse l'air encore présent sous forme de bulles s'échappant à travers l'eau de l'ampoule à décanter. Quand tout l'air a été chassé, aucune bulle ne s'échappe plus, l'eau monte dans l'ampoule.

3) On ferme P_2 et P_1 .

La bonbonne est fermée hermétiquement et ne contient plus de bulles d'air.

L'efficacité du procédé sera vérifiée en étudiant l'évolution de l'activité présente dans la bonbonne.

D'après ce que nous avons vu en étudiant les équilibres radioactifs, elle doit croître et atteindre une valeur limite qu'elle conserve. Si cette croissance n'a pas lieu de façon continue, si l'activité limite n'est pas constante, le Radon diffuse et le dispositif n'est pas satisfaisant .

III - ETUDE D'UNE SOLUTION ETALON DE RADIUM D'ACTIVITE ELEVEE

Cette expérience a été réalisée en plaçant dans la bonbonne 20 ml de solution A, ce qui représente :

$$\underline{1.728 \cdot 10^{-10} \text{ curie/litre.}}$$

On a choisi de commencer par l'étude d'une solution d'activité élevée pour ajuster le système anti-compton. Avec des activités de cet ordre, il est inutile de fixer un temps de comptage de 210 minutes ; 4 x 49,2 secondes suffisent pour que l'erreur statistique de comptage soit inférieure à 1 %. On peut alors négliger le mouvement propre des sondes, ce qui permet de déduire les distributions compton directement en les enregistrant en soustraction.

Dans cette expérience, comme dans celles portant sur des solutions étalons, nous avons effectué :

- L'étude du spectre du rayonnement γ détecté par le cristal I Na (Tl).

- La représentation graphique de l'activité du RaC, en fonction du temps.

- La détermination de l'activité du Radon et du Radium à l'équilibre radioactif.

1. - Spectre du rayonnement γ émis par l'échantillon

=====

Ce spectre est représenté fig. (22). Il correspond au spectre obtenu avec le cristal I Na (Tl) débarrassé du

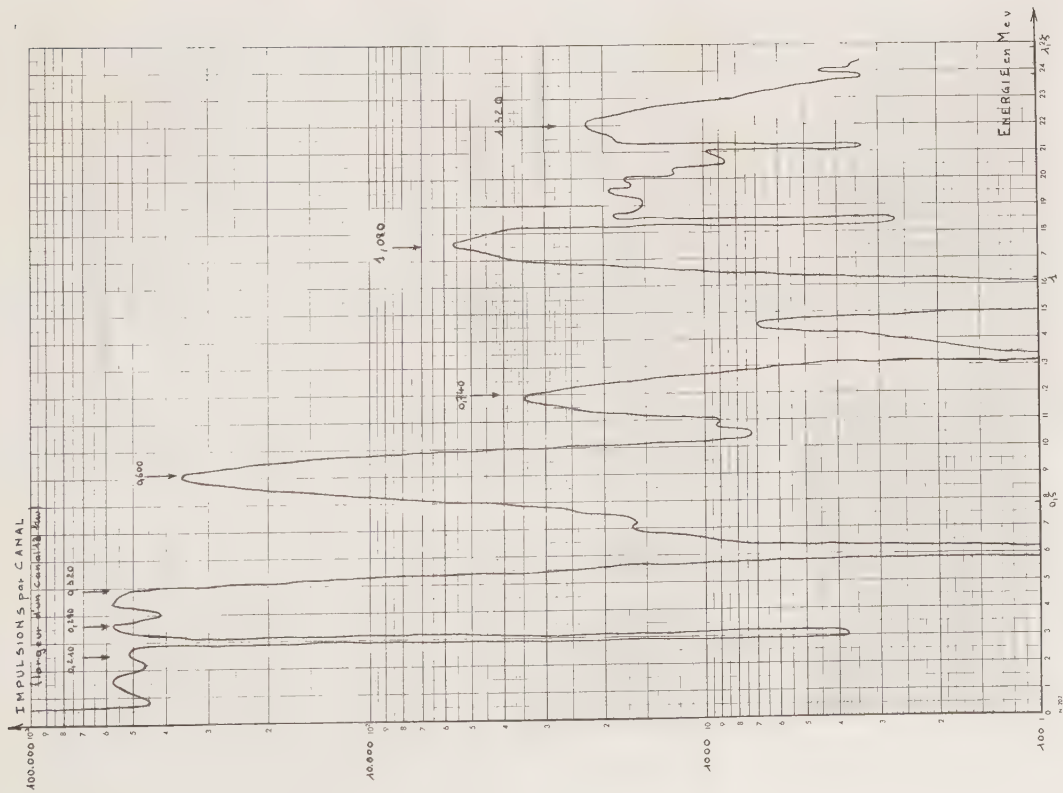


FIGURE : 22

Spectre γ du Radium

- Détecteur Ina(Tl).
- Temps de comptage 210 minutes.
- Activité de la solution 1720×10^{-10} curie/litre.
- Distribution Compton déduite

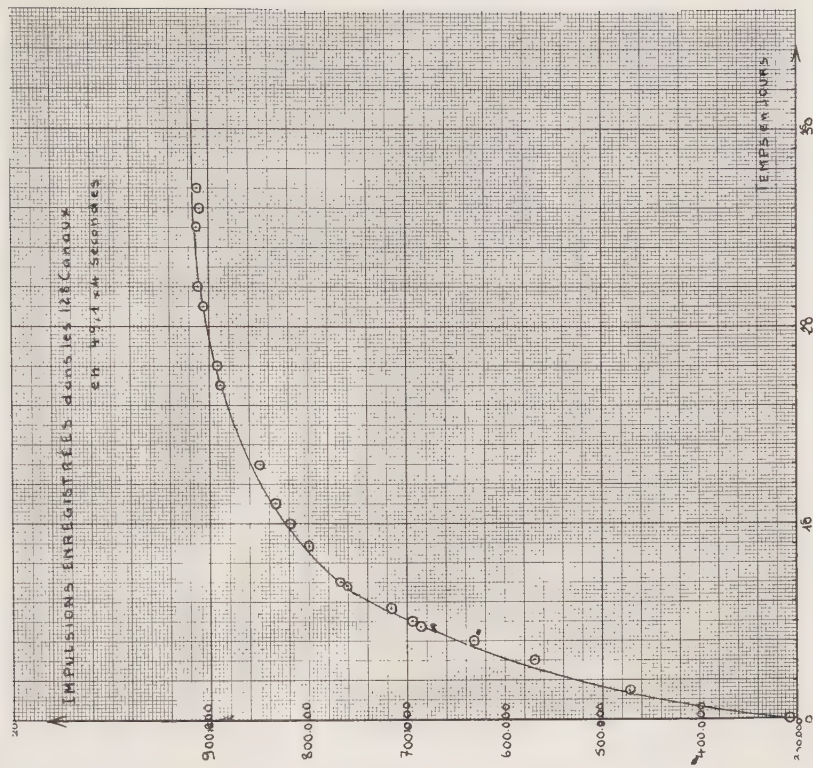


FIGURE : 23

Nombre d'impulsions détectées au sommet du pic de 0,609 Mev (RaC), en fonction du temps.

Activité de la solution 1720×10^{-10} curie/litre.

spectre compton donné par le scintillateur plastique.

Dans le tableau ci-dessous, nous comparons l'énergie des pics repérés dans le spectre avec celle des photons γ émis par le RaB et le RaC descendants à vie courte du Radon.

Energie des principaux photons γ émis :		Energies correspondant aux pics d'absorption totale observés dans le spectre :	
par les descendants à vie courte du Radium (en Mev).		de la solution étalon (en Mev).	
-----		-----	
²¹⁴ ₈₂ Pb	0,241	:	0,210
	0,295	:	0,290
	0,351	:	0,320
²¹⁴ ₈₃ Bi	0,609	:	0,600
	0,766	:	0,740
	1,120	:	1,080
	1,370	:	1,320

On retrouve les pics d'absorption totale des photons dont l'abondance relative est la plus grande.

Le pic correspondant à l'absorption totale des photons γ de 0,609 Mev émis par le RaC se détache particulièrement de l'ensemble du spectre ; c'est pourquoi nous l'avons choisi pour déterminer l'activité présente.

2. - Activité en fonction du temps

=====

Nous avons enregistré le nombre total d'impulsions détectées dans les 128 canaux à raison de 49,2 x 4 secondes par canaux, en fonction du temps. Fig (23).

Ce comptage des γ détectés équivaut à la mesure de l'activité du Radon à un coefficient près.

La courbe obtenue est régulière, une valeur constante du nombre d'impulsions est atteinte au bout de 20 jours environ.

A l'équilibre radioactif, l'activité du Radon est égale à celle du Radium; elle est constante. On en conclut que le Radon ne diffuse pas, le dispositif de mise en bonbonne est efficace.

3. - Détermination de l'activité du Radon et du Radium

=====

La fig. (22) montre le pic d'absorption totale des photons γ de 0,609 Mev. Toutes les impulsions logées dans la surface du pic sont dues exclusivement à l'absorption totale des photons γ de 0,609 Mev émis par le RaC.

Nous déterminons l'activité de ce nuclide par le procédé de calcul explicité chapitre I, paragraphe 3.

3.1. - Nombre d'impulsions dans la surface du pic

La relation $S = k \cdot h \cdot l$

où

- h est la hauteur du pic mesuré au sommet, exprimée en impulsions.

- l est la largeur du pic à mi-hauteur, exprimée

en nombre de canaux.

$$- k = 1,07$$

permet de calculer la surface du pic :

$$S = 36.185 \times 5,4 \times 1,07$$

$$S = 209.078 \text{ impulsions en } 13,1 \text{ minutes}$$

$$\underline{S = 15.960 \text{ impulsions/minute}}$$

3.2. - Nombre de photons γ de 0,609 Mev émis par la

source

L'efficacité de détection des photons de 0,609 Mev de notre ensemble de comptage a été déterminée expérimentalement par Ch.A. BIZOLLON.

Elle est de $9 \cdot 10^{-3}$.

Le nombre de photons de 0,609 Mev est donc :

$$15.960 \times \frac{1}{9 \times 10^{-3}} = 1773 \times 10^3$$

$$\underline{1773 \times 10^3 \text{ photons } \gamma \text{ de } 0,609 \text{ Mev émis par minute.}}$$

3.3. - Nombre de désintégrations de RaC dont la source

est le siège

En appliquant le rapport Nombre de photons/nombre de désintégrations donné par T.P. KOHMAN, qui est de 0,293, on obtient :

$$1773 \times 10^3 \times \frac{1}{0,293} = 6.046 \times 10^3 \text{ désintégrations/minute.}$$

On sait que le microcurie équivaut à 2.220.000 désintégrations/minute.

On a donc : $2.723 \cdot 10^{-10}$ curie/litre $\pm$ 0,48 %.

En appliquant le rapport déterminé à partir des indications de BACKENSTOSS qui est de 0,446 on obtient :

$$1773 \times 10^3 \times \frac{1}{0,446} = 3.975 \times 10^3 \text{ désintégrations/minute.}$$

Soit $1.790 \cdot 10^{-10}$ curie/litre $\pm$ 0,48 %

3.4. - Activité du Radon et du Radium

Nous sommes à l'équilibre radioactif ; ces activités sont égales à celle du RaC à 1 % près.

Discussion

Ces deux valeurs de l'activité du RaC s'écartent de la valeur de l'activité de la solution mise en bonbonne.

- La première : $2723 \cdot 10^{-10}$ curie/litre
en diffère de 58 %.

- La deuxième : $1790 \cdot 10^{-10}$ curie/litre
en diffère de 3,6 %.

Il est évident qu'il ne peut y avoir qu'une valeur acceptable, nous retiendrons celle qui est la plus proche de nos résultats en remarquant d'ailleurs que l'écart qu'elle présente vis à vis de la valeur théorique n'est pas dû à une erreur statistique de comptage.

Les différences entre les valeurs théoriques et calculées de l'activité du RaC peuvent avoir plusieurs origines :

- Mélange non homogène.
- Mauvais ajustement des distributions compton obtenues avec les deux détecteurs.
- Coefficient d'efficacité de détection des photons de 0,609 Mev inexact.
- Rapport, Nombre de photons/désintégration erroné.

Il paraît peu probable que le mélange ne soit pas homogène. Les activités étant supérieures aux activités théoriques, cela revient à admettre une accumulation de RaC, sur les parois internes de la sonde à détecteur I Na (Tl).

On peut expliquer cela par une adsorption préalable du Radon sur le chlorure de polyvinyle dont est faite la bonbonne. Cette adsorption est difficile à prouver car, en fin d'expérience, une fois la bonbonne vidée, il persiste une légère activité résiduelle sans rapport avec ce qu'elle devrait être si le RaC était adsorbé sur les parois.

L'efficacité de détection des photons γ de 0,609 Mev a été déterminée par Ch.A. BIZOLLON dans les mêmes conditions de détection et de comptage ; on peut admettre qu'elle n'a pas varié.

Le mauvais ajustement des distributions compton parait plus vraisemblable si l'on se rappelle les difficultés existant pour effectuer ce réglage. Cependant nous l'avons vérifié avec une solution de ^{137}Cs , l'ajustement était aussi parfait que possible.

Les valeurs du Nombre de photons/désintégration sont, par contre, sujettes à caution. Nous en avons délibérément abandonné une, celle que mentionne T.P. KOHMAN ; la deuxième, déterminée à partir des indications de BACKENSTOSS nous donne une valeur de l'activité à 3 % près égale à l'activité mise en bonbonne. Nous considérons ce résultat comme satisfaisant. Notre expérience semble autoriser à écarter la valeur du nombre de photons/désintégration de T.P. KOHMAN au profit de celle déterminée à partir des indications de BACKENSTOSS.

CONCLUSIONS

Notre ensemble de comptage permet donc de faire une mesure absolue des activités du Radon et du Radium, connaissant l'efficacité de détection des photons γ de 0,609 mev.

Le rapport $\frac{A_e}{N_e}$ est égal à $25,4 \cdot 10^{-4}$; nous vérifierons cette valeur pour les autres solutions étalons de Radium ; il permet la mesure relative des activités du Radon et du Radium.

IV - ETUDE DE SOLUTIONS ETALONS DE RADIUM D'ACTIVITES FAIBLES

Nous avons effectué deux expériences en plaçant dans la bonbonne des solutions contenant :

$8,64 \cdot 10^{-10}$ curie/litre.

$4,32 \cdot 10^{-10}$ curie/litre.

1. - Solution étalon de $8,64 \cdot 10^{-10}$ curie/litre

=====

Le spectre du rayonnement γ émis par cette solution est représenté fig. (24). On y retrouve les pics caractéristiques des descendants à période courte du Radon, RaB, RaC.

La courbe représentative de l'activité en fonction du temps, montre une évolution continue vers une valeur constante quand l'équilibre radioactif est atteint. Fig (25).

A l'équilibre, l'activité est de :

$10,27 \cdot 10^{-10}$ curie/litre $\pm 7 \%$

Cette valeur s'écarte de 19 % de l'activité mise en bonbonne. Ce résultat est donc acceptable si l'on choisit comme intervalle d'incertitude $\pm 20 \%$, mais ici encore on remarque que l'écart à la valeur théorique est supérieur aux erreurs statistiques de comptage.

Le rapport $\frac{A_e}{N_e} = 24,4 \cdot 10^{-4}$

2. - Solution étalon de $4,32 \cdot 10^{-10}$ curie/litre

=====

Le spectre du rayonnement γ émis par la source est figuré fig. (26). Comme précédemment on retrouve les pics caractéristiques des descendants à vie courte du Radon, RaB, RaC.

L'activité du RaC a été étudiée en fonction du temps, fig (27).

Cette courbe représentative est régulière, sans "décrochages" ; elle aboutit à une valeur constante à l'équilibre radioactif.

L'activité du RaC à l'équilibre est de :

$$\underline{4,76 \cdot 10^{-10} \text{ curie/litre } \pm 15 \% .}$$

Cette valeur s'écarte de 10 % de la valeur réelle, ce qui, compte tenu de l'erreur statistique de comptage, est une très bonne valeur.

$$\text{Le rapport } \frac{A_e}{N_e} = 24,7 \cdot 10^{-4}$$

V - CONCLUSIONS GENERALES A PROPOS DE LA MESURE DES SOLUTIONS

ETALONS DE RADIUM

De cette série d'expériences, il ressort que la spectrométrie γ , permet l'analyse qualitative et quantitative du Radon et du Radium des eaux.

L'analyse qualitative se fait en comparant le spectre γ de l'échantillon au spectre γ des solutions étalons.

L'analyse quantitative se fait de deux façons :

- Par une mesure relative en comparant la hauteur des pics d'absorption totale des photons γ de 0,609 Mev du spectre de l'échantillon et du spectre des solutions étalons. Cela est

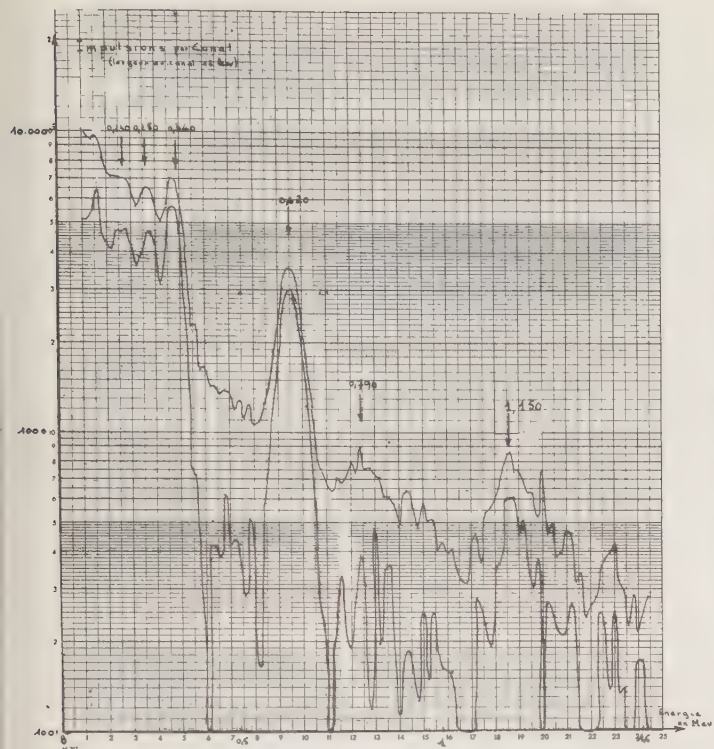


FIGURE : 24

Spectre X du Radium

- Détecteur INa (Tl).
- Temps de comptage 210 minutes.
- Activité de la solution $8,64 \times 10^{-10}$ curie/litre.
- Tracé supérieur : distribution compton non déduite.
- Tracé inférieur : distribution compton déduite.

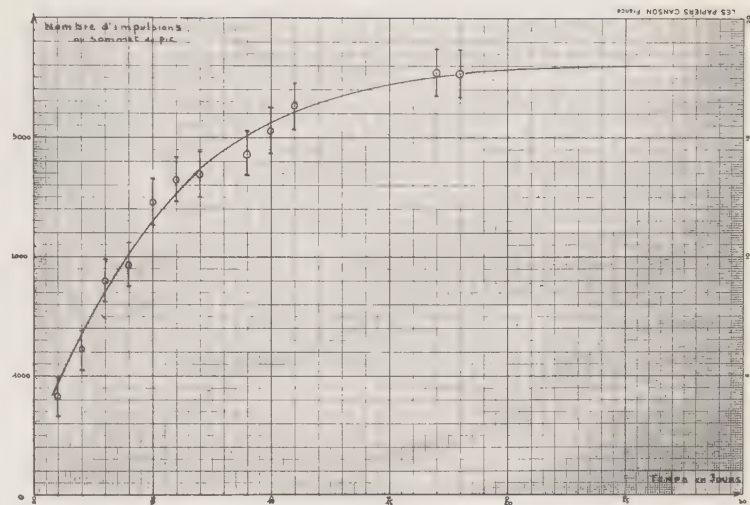


FIGURE : 25

Nombre d'impulsions détectées au sommet du pic de 0,609 Mev (RaC), en fonction du temps.

Activité de la solution de Radium : $8,64 \times 10^{-10}$ curie/litre.

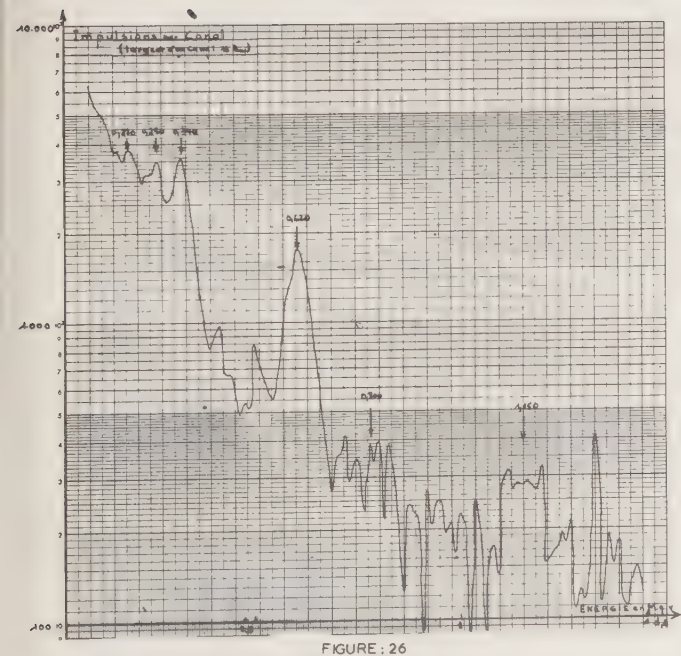


FIGURE : 26

Spectre Y du Radium

- Détecteur INa (Tl).
- Activité de la solution $4,32 \times 10^{-10}$ curie/litre.
- Temps de comptage 210 minutes.

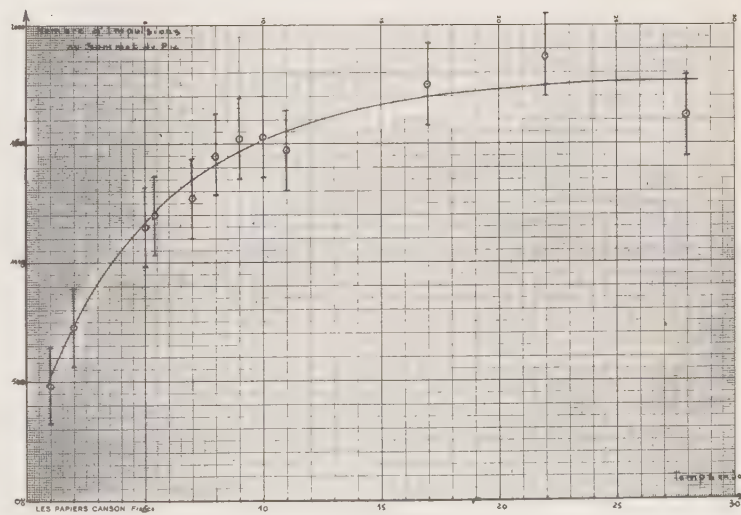


FIGURE : 27

Nombre d'impulsions détectées au sommet du pic de 0,609 Mev (RaC) en fonction du temps.

Activité de la solution de Radium : $4,32 \times 10^{-10}$ curie/litre.

rendu possible par la constance du rapport $\frac{A_e}{N_e}$ qui traduit la fidélité de la méthode.

- Par une mesure absolue en connaissant l'efficacité de détection des photons γ de 0,609 Mev par notre ensemble de comptage. Cette mesure absolue effectuée sur les solutions étalons nous a amené à rejeter la valeur du nombre de photons γ de 0,609 Mev émis par désintégration de RaC donné par T.P. KOHMAN, pour conserver celle déterminée à partir des indications de BACKENSTOSS.

Il apparait que le système de remplissage de la bonbonne sans emprisonner des bulles d'air, est efficace, le Radon ne diffusant pas. De même l'adsorption du Radon par le chlorure de polyvinyle semble négligeable.

La mise en oeuvre du système anti-compton permet l'analyse qualitative précise de l'eau ; cependant elle entraîne une majoration de l'erreur sur la détermination de faibles activités.

Ayant adopté comme nombre de photons γ de 0,609 Mev émis par désintégration de RaC, la valeur déterminée d'après les indications de BACKENSTOSS, nous pouvons calculer l'activité minimale détectable en désintégrations/minute par notre ensemble de comptage.

Elle est de :

$$\underline{2,45 \cdot 10^{-10} \text{ curie/litre.}}$$

On peut donc mesurer des concentrations inférieures à la C.M.A.P. quand il s'agit du Radon (C.M.A.P. = $40 \cdot 10^{-10}$ curie/litre).

VI - MODE OPERATOIRE PROPOSE

Pour doser les teneurs en Radon et en Radium d'une eau par spectrométrie γ , nous proposons le protocole suivant :

1) Mesure de l'activité d'une solution étalon de Radium avec l'ensemble de détection et de comptage choisi. Cela permet de déterminer :

- La valeur du rapport $\frac{A_e}{N_e}$ qui sert à effectuer les mesures relatives.

- L'efficacité de détection des photons γ de 0,609 Mev et le nombre de ces photons émis par désintégration de RaC, qui servent aux mesures absolues.

2) Pour assurer le contrôle de la radioactivité de l'eau, il suffit de placer l'échantillon dans la bonbonne, de fermer celle-ci de façon étanche et sans emprisonner de bulles d'air.

- D'enregistrer le spectre avec le détecteur à scintillateur I Na (Tl) pendant 210 minutes (1)

- D'enregistrer le spectre avec le détecteur à scintillateur plastique pendant 210 minutes. (2)

= La soustraction à (1) de (2) permet l'analyse qualitative de l'eau en repérant les pics étrangers au spectre. La hauteur du pic de 0,609 Mev permet de mesurer les activités du RaC et du Radon présents.

= Son évolution dans le temps rend compte de la présence ou non d'un équilibre entre le Radium et le Radon.

Quand l'équilibre n'existe pas au départ s'il y a du Radium, son dosage est possible, en laissant l'équilibre se réaliser, à condition que son activité soit supérieure ou égale à $2,45 \cdot 10^{-10}$ curie/litre.

CHAPITRE III

APPLICATION DE LA METHODE A LA MESURE DU RADON ET DU RADIUM

=====

DES EAUX THERMALES DE LA STATION DE ROYAT

=====

I - CARACTERISTIQUES DES EAUX DE ROYAT

La station thermale possède cinq sources qui jaillissent le long des rives d'un ruisseau traversant la ville. Les griffons sont groupés, leur aire d'émergence ne dépasse pas deux cents mètres de long sur cinquante de large.

Ce site occupe une partie de la grande faille bordière où s'affrontent les terrains granitiques supportant la chaîne des Puys et les formations tertiaires de la plaine de la Limagne. Les caractéristiques géologiques de ce lieu expliquent que ces eaux contiennent du Radium et du Radon.

Parmi les cinq sources, quatre sont thermales et moyennement minéralisées EUGENIE, SAINT-MART, CESAR, SAINT-VICTOR, la cinquième VELLEDA est froide et faiblement minéralisée.

Les teneurs en Radon et Radium des eaux et des gaz émis par les sources, ont été étudiées par de nombreux auteurs.

Tableau : 3

TENEUR en RADIUM et en RADON des EAUX THERMALES de ROYAT

SOURCE	DATE	AUTEURS	LIEUX de Prélèvement	ACTIVITE EAUX	RADON EMIS. GAZ SPONTANÉ	QUANTITÉ de RADIIUM	ACTIVITE RADIUM
S ^T MART	1925	JACQUET	griffon	143×10^{-10} curie/litre			
	1931	LE PAPE.A	griffon	$115,3 \times 10^{-10}$ curie/litre	355×10^{-10} curie/litre de gaz	$31,7 \times 10^{-12}$ gr.	
	1950	COURSAGET	bain	$6^h 45-117 \times 10^{-10}$ curie/litre			$0,37 \times 10^{-10}$ curie/l.
			buvette	$17^h 30-93,5 \times 10^{-10}$ curie/litre			$0,36 \times 10^{-10}$ curie/l.
EUGÉNIE	1925	JACQUET	griffon (buvette)	4×10^{-10} curie/litre			
		LE PAPE.A	griffon (buvette)	$4,6 \times 10^{-10}$ curie/litre	$21,2 \times 10^{-10}$ litre de gaz	$41,2 \times 10^{-12}$ gr.	
	1950	COURSAGET	griffon	$8^h 30-4,37 \times 10^{-10}$ curie/litre			$0,96 \times 10^{-10}$ curie/l.
			(buvette)	$17^h 30-3,12 \times 10^{-10}$ curie/litre			$0,047 \times 10^{-10}$ curie/l.
			bain A	$8^h 00-4,79 \times 10^{-10}$ curie/litre			$0,28 \times 10^{-10}$ curie/l.
			bain B	$8^h 30-3,60 \times 10^{-10}$ curie/litre			
S ^T VICTOR	1925	JACQUET	griffon	$4,51 \times 10^{-10}$ curie/litre			$0,65 \times 10^{-10}$ curie/l.
	1931	LE PAPE.A	griffon	156×10^{-10} curie/litre			
	1925	JACQUET	griffon	$131,4 \times 10^{-10}$ curie/litre	379×10^{-10} litre de gaz	$28,9 \times 10^{-12}$ gr.	
CESAR	1925	JACQUET	griffon	4×10^{-10} curie/litre			
	1931	LE PAPE.A	griffon	$3,6 \times 10^{-10}$ curie/litre	$21,9 \times 10^{-10}$ litre de gaz	$22,8 \times 10^{-12}$ gr.	

Le tableau (3) résume les résultats de leurs mesures. On voit que pour les quatre sources thermales, les teneurs en Radium sont comparables ; elles varient entre 22 et 42 . 10^{-12} grammes. Par contre, les teneurs en Radon sont différentes ; SAINT-MART et SAINT-VICTOR en contiennent beaucoup, 150 . 10^{-10} curie/litre environ ; EUGENIE et CESAR en contiennent peu, aux alentours de 4 . 10^{-7} curie/litre.

II - UTILISATION THERAPEUTIQUE

Les eaux de ROYAT sont utilisées depuis l'Antiquité Romaine, comme en témoignent les vestiges d'anciens thermes mis à jour près de l'Etablissement Thermal actuel.

De nos jours, les indications majeures de cure sont l'hypertension et les affections artérielles génératrices de thromboses.

Le traitement thermal est administré selon trois modes:

- Bains carbo-gazeux.
- Bains de gaz thermaux secs.
- Injections sous cutanées de gaz.

L'action vasodilatatrice des gaz thermaux a été particulièrement étudiée, par F. JOURDAN et ses collaborateurs du Centre de Recherches Cardiologiques de ROYAT.

III - ETUDE DES EAUX DE LA SOURCE EUGENIE

Par son débit, c'est la plus importante des sources thermales de la Station. L'eau captée au griffon alimente une buvette et une centaine de cabines de bains.

1. - Prélèvement de l'eau

=====

Il n'est pas possible de prélever l'eau au griffon, ce dernier n'étant pas accessible.

Deux possibilités s'offrent à l'expérimentateur.
Prélever l'eau :

- à la buvette
- aux bains.

L'eau de la buvette jaillit dans une vasque où le gaz carbonique dont elle est très chargée, la fait bouillonner. Ceci entraîne une perte importante du Radon dissous. De plus, pour des raisons d'encombrement propre aux récipients que nous utilisons, le recueil de l'eau est difficile à cet endroit.

L'eau des baignoires est au contraire identique à celle du griffon. En effet pour ne pas perdre de gaz carbonique élément important du pouvoir thérapeutique de l'eau, d'une part les canalisations d'amenée d'eau sont très étanches, d'autre part le remplissage des bains se fait par la partie inférieure du récipient, ce qui empêche l'eau de bouillonner et les gaz de diffuser. Ces précautions prises pour éviter la perte de gaz carbonique ont pour conséquence la conservation du Radon dissous.

Il nous a donc paru profitable de prélever l'eau dans les baignoires pour déterminer sa teneur en Radon et en Radium au griffon.

Le mode opératoire est le suivant :

- Remplissage d'un bain, ce qui demande cinq minutes environ.
- Immersion de la bonbonne.
- Fermeture sous l'eau des orifices de remplissage et de vidange.

L'heure et la date du prélèvement sont notées ; le récipient est rapidement ramené au Laboratoire de Physique de LYON.

2. Mesures de l'activité du Radon et du Radium

=====

Dès l'arrivée à LYON, la bonbonne est placée dans le fort en plomb, assurant son blindage ; les détecteurs à scintillateur I Na (Tl) et à scintillateur plastique sont mis en place ; les mesures commencent.

On enregistre le spectre donné par le détecteur I Na (Tl) tous les jours. Ceci permet l'analyse qualitative de l'eau, l'étude de l'évolution de l'activité présente, la détermination des teneurs en Radon et en Radium de l'eau au griffon.

2.1. - Analyse qualitative de l'eau

Elle repose sur :

- L'analyse du spectre γ de l'échantillon ;
- L'étude de l'activité en fonction du temps.

2.1.1. - Etude du spectre γ de l'échantillon

La fig. (28) représente le spectre γ de la source

EUGENIE. On retrouve dans ce spectre les pics caractéristiques des deux descendants à vie courte du Radon, le RaB et le RaC. Ces éléments étant détectés 10 heures après le prélèvement, on peut conclure que l'eau de la source EUGENIE contient du Radon, leur précurseur.

2.1.2. - Etude de l'activité en fonction du temps

Nous avons porté le nombre d'impulsions détectées avec le scintillateur I Na (Tl) au niveau du pic de 0,609 Mev, en fonction du temps.

Le mouvement propre a été déduit. L'origine des temps est prise le 14 Septembre 1964 à 11 heures, heure de prélèvement au griffon.

La courbe représentative en coordonnées semi-logarithmiques est une droite. Fig (29). L'activité décroît donc exponentiellement en fonction du temps.

Quand l'activité décroît de moitié, l'intervalle de temps écoulé est voisin de 3,8 jours, période du Radon. On peut donc conclure que l'eau de la source EUGENIE contient du Radon qui n'est pas en équilibre radioactif avec le Radium.

L'activité du Radium décroît et atteint une valeur limite qu'il est difficile de différencier du mouvement propre. Il est donc impossible de préciser si l'eau contient du Radium.

2.2. - Analyse quantitative de l'eau

Cette analyse a été faite suivant les deux procédés que nous avons indiqués.

2.2.1. - Mesure relative

Nous choisissons un point expérimental situé sur la droite représentant l'activité en fonction du temps.

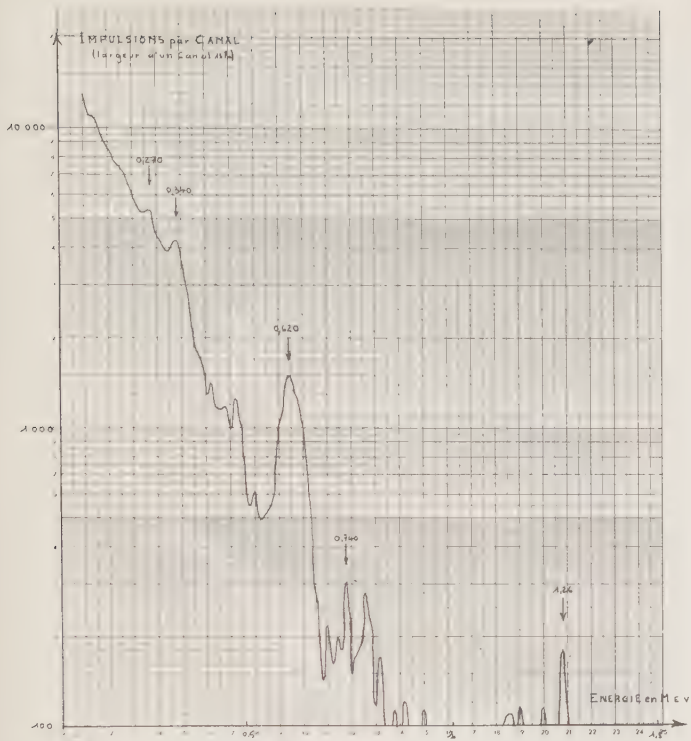


FIGURE 28

Spectre γ obtenu avec l'eau de la source EUGENIE, à l'aide du détecteur à Cristal Ina(Tl) .

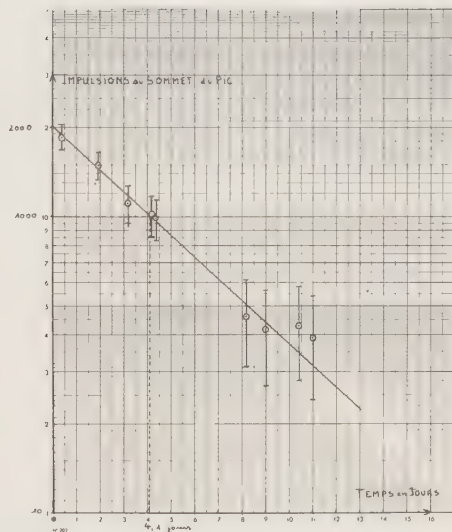


FIGURE 29

Nombre d'impulsions détectées en 210' au sommet du pic de 0,609 Mev (RaC), en fonction du temps.

Source EUGENIE

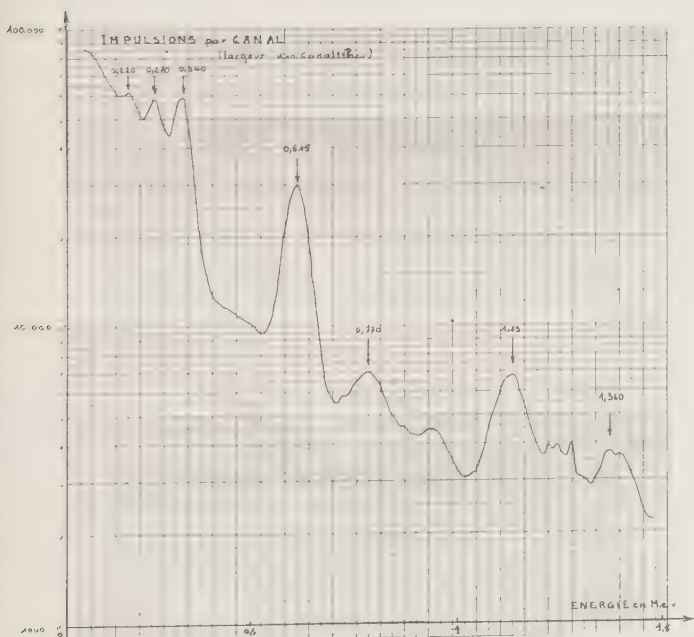


FIGURE 30

Spectre γ obtenu avec l'eau de la source St-MART à l'aide du scintillateur Ina(Tl) .

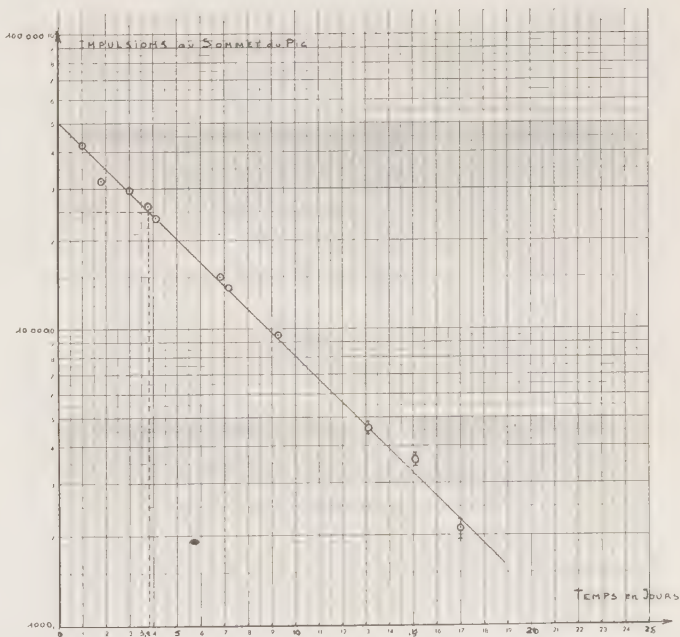


FIGURE 31

Nombre d'impulsions détectées en 210 minutes au sommet du pic de 0,609 Mev (RaC), en fonction du temps.

Source St-MART.

Ainsi le 14/9/64 à 20 heures, la mesure effectuée donnait :

1.855 impulsions en 210 minutes, au sommet du pic de 0,609 Mev.

En appliquant la formule :

$$\frac{A_e}{N_e} = 24,5 = \frac{A}{1855}$$

L'activité de la source est de :

$$\underline{1.855 \cdot 24,5 = 4,54 \cdot 10^{-10} \text{ curie/litre}}$$

ce qui donne le jour du prélèvement, le 14/9/64 à 11 heures :

$$\underline{4,86 \cdot 10^{-10} \text{ curie/litre} \pm 10 \%}$$

2.2.2. - Mesure absolue

Nous avons effectué une seule mesure absolue le 16/9/64 à 10 heures. Le point expérimental correspondant à cette mesure n'est pas exactement sur la droite représentative de l'activité en fonction du temps.

L'activité déterminée par la mesure relative est de :

$$\underline{5,22 \cdot 10^{-10} \text{ curie/litre} \pm 11 \%}$$

L'activité déterminée par mesure absolue est de :

$$\underline{5,26 \cdot 10^{-10} \text{ curie/litre} \pm 16 \%}$$

On constate qu'il existe un accord remarquable entre les deux façons de calculer l'activité du Radon de l'eau de la source EUGENIE.

Nous choisissons $4,86 \cdot 10^{-10}$ curie/litre $\pm 10\%$.

Cette valeur étant déterminée à partir d'un point expérimental situé sur la courbe.

IV - ETUDE DES EAUX DE LA SOURCE SAINT-MART

C'est la deuxième source par l'importance de son débit. Son captage alimente une buvette et des cabines de bains.

1. - Prélèvement de l'eau

=====

Pour des raisons de commodités semblables à celles que nous avons exposées pour la source EUGENIE, l'eau a été prélevée par immersion de la bonbonne dans une baignoire.

2. - Mesure des teneurs en Radon et en Radium

=====

2.1. - Analyse qualitative

Le spectre γ de l'échantillon d'eau représenté fig. (30) permet de noter la présence des pics d'absorption totale des photons γ émis par le RaB et le RaC, descendants à vie courte du Radon.

Ces éléments étant présents 10 heures après le prélèvement de l'eau au griffon, on peut conclure que celle-ci contient du Radon dissous, leur précurseur immédiat.

L'activité en fonction du temps est représentée fig (31) ; on en conclut qu'elle décroît exponentiellement en fonction du temps. Quand l'activité décroît de moitié, l'intervalle de temps écoulé est très voisin de la période du Radon, 3,8 jours.

L'eau de la source SAINT-MART contient donc du Radon qui n'est pas en équilibre radioactif avec le Radium s'il y en a.

2.2. - Analyse quantitative

La mesure relative effectuée à partir d'un point expérimental se trouvant sur la droite, celui du 15/10/64 à 14 heures par exemple, donne comme valeur de l'activité :

$$\underline{124,6 \cdot 10^{-10} \text{ curie/litre} \pm 1,2 \%}$$

Le 12/10/64 à 15 heures 30, heure et jour du prélèvement, la mesure ^{absolue} effectuée sur cette même valeur expérimentale donne :

$$\underline{133,8 \cdot 10^{-10} \text{ curie/litre} \pm 6,3 \%}$$

Ces deux valeurs sont compatibles aux erreurs d'expérience près.

Comme pour la source EUGENIE, l'activité décroît et atteint une limite qu'il est difficile de différencier de la valeur du mouvement propre aux erreurs statistiques de comptage près.

L'eau de la source SAINT - MART contient du Radon dissous ; il n'est pas possible de déterminer l'activité du Radium qu'elle contient.

V - CONCLUSIONS

La mesure directe des teneurs en Radon des deux sources EUGENIE et SAINT-MART a été possible par notre méthode.

Les résultats obtenus sont comparables à ceux des auteurs qui ont étudié ces eaux avant nous. Cf. Tableau (3)

La mesure directe des teneurs en Radium de ces eaux qui sont très faibles (inférieures à 10^{-10} curie/litre) n'a pas été possible.

=====

CONCLUSION

L'importance croissante de la consommation des eaux minérales comme eaux de table, pose le problème du contrôle de leur potabilité en ce qui concerne la radioactivité.

La majeure partie des eaux minérales jaillissent au sein de formations primaires ; il importe donc, au premier chef, de détecter le Radium et son descendant immédiat, le Radon.

Le choix d'une méthode reposant essentiellement sur l'étude détaillée des propriétés physiques, chimiques, radioactives de la famille du Radium, nous les avons rappelées. Cette étude montre que, si la plupart d'entre elles sont fidèles et sensibles, elles sont difficiles à mettre en oeuvre.

Il est remarquable, qu'en ce qui concerne la mesure de la radioactivité du Radium et du Radon dans les eaux, le rayonnement γ ne semble jamais utilisé. La détection de ce rayonnement est, à priori, favorable et elle a été appliquée à d'autres milieux que l'eau. Ce procédé bénéficie actuellement des derniers développements de la technique.

Les scintillateurs minéraux de grandes dimensions ont permis la construction de détecteurs d'efficacité importante.

Associés aux photomultiplicateurs et aux analyseurs d'impulsions, ils constituent des ensembles de spectrométrie γ d'emploi sûr.

La mesure est grandement facilitée par la mise en oeuvre d'un dispositif permettant d'éliminer les impulsions dues à l'effet compton, pour ne conserver que celles provoquées par l'absorption totale des photons γ .

L'application de la spectrométrie γ à la mesure des faibles teneurs en Radon et en Radium de l'eau, a nécessité l'élaboration d'un matériel particulier.

Le récipient contenant l'échantillon à mesurer, est une bonbonne sphérique de 10 litres. En son centre sont logés les détecteurs à Iodure de Sodium activé au Thallium et à scintillateur plastique.

Le premier permet d'obtenir le spectre total du rayonnement γ émis par l'eau ; le second, le spectre compton. Un analyseur d'impulsions à 128 canaux, les recueille et en donne le spectre. La soustraction du spectre compton ne laisse subsister que le spectre d'absorption totale. Ce spectre permet l'identification des éléments radioactifs responsables.

Pour cela, il est indispensable de posséder une solution étalon de Radium.

L'identification des émetteurs γ se fera en comparant le spectre γ de l'échantillon, à celui de la solution étalon.

Ce spectre permet aussi l'analyse quantitative des éléments présents, en repérant un pic caractéristique dans le spectre. Le calcul de l'activité se fera à partir du nombre d'impulsions qui constituent ce pic.

Le RaC ($^{214}_{83}\text{Bi}$) est tout à fait indiqué pour cette détermination, car le pic d'absorption totale des photons de 0,609 Mev qu'il émet en se désintégrant, est particulièrement facile à isoler.

Deux moyens de déterminer l'activité de ce nuclide s'offrent alors :

- Mesure relative par comparaison avec les résultats obtenus avec la solution étalon de Radium. (On en déduit immédiatement la concentration de l'eau en Radium et en Radon).
- Mesure absolue, connaissant l'efficacité de détection de l'ensemble de comptage.

Les résultats ainsi obtenus interprétés en fonction des schémas de désintégration des Précurseurs du RaC, permettent de remonter à l'activité de l'eau liée au Radon et au Radium.

La méthode est progressivement mise en oeuvre, en soumettant à la mesure des solutions étalons. L'une d'activité assez élevée $1728 \cdot 10^{-10}$ curie/litre ; deux d'activités plus faibles $8,64 \cdot 10^{-10}$ et $4,32 \cdot 10^{-10}$ curie/litre. La solution de forte activité permet d'ajuster le système anti-compton.

Connaissant l'efficacité de détection de l'appareillage utilisé, on calcule, à partir du pic de 0,609 Mev, l'activité du RaC de l'eau. On constate alors que ces résultats nous engagent à admettre qu'il y a 0,446 photons de 0,609 Mev émis par désintégration de RaC.

Le Radon des deux sources thermales de ROYAT est mesuré par la technique que nous venons de mettre au point.

La source EUGENIE contient $4,86 \cdot 10^{-10}$ curie/litre.
Les mesures effectuées par COURSAGET en 1958 donnaient
 $4,79 \cdot 10^{-10}$ curies/litre.

La source SAINT-MART contient $124,5 \cdot 10^{-10}$ curies
par litre.
Les auteurs précédents indiquaient $117 \cdot 10^{-10}$ curie/litre.

Dans les deux cas, il ne nous a pas été possible de doser le Radium.

=====

BIBLIOGRAPHIE

N.D. BALYASNYI, L.I. BOLTNEVA, A.V. DMITRIEV et coll.

Aerial determination of the Radium, Thorium, and Potassium content of Rocks.

Atomnaya Energiya. 10, n° 6, 626-629, 1961.

Ch.A. BIZOLLON.

Le Radon. Son origine, ses propriétés, son dosage dans les eaux.

Lyon Pharmaceutique. XIII, n° 8, 327-343, 1962.

Ch.A. BIZOLLON.

Application de la spectrométrie γ à l'analyse qualitative et quantitative de traces de Radioéléments dissous dans l'eau.

Thèse de Doctorat en Pharmacie d'Etat. Faculté mixte de Pharmacie de LYON. 1963.

H. BLATZ.

Radiation hygiene Handbook.

Mc graw-hill book Company, Inc NEW-YORK, 1959.

R.O.R. BROOKS

The determination of Radium in Urine.

Atomic Energy, research authority. A.E.R.E.A.M. 1960.

Madame P. CURIE.

Radioactivité.

Hermann et cie Editeurs PARIS, 1935.

R. CUVELLIER, J. TERRASSE.

Thérapeutique thermale des affections artérielles thrombosantes.

Congrès International de la Thrombose artérielle.

ROYAT, 6, 7, 8 Juin 1953.

Edité par les archives des maladies du Coeur.

J.B. BAILLIERE et Fils - PARIS, 1953.

M. DEBEAUVAIS, E. PICCIOTO et S. WILGRAIN.

Arrêt de la diffusion des radioéléments dans les émulsions nuléaires par exposition à basse température.

Il Nuevo Cimento. 5, 260, 265 - 1957.

H. DUQUESNE, E.E. GODFROI, J. GOVAERTS, R. WARIN and J. MICHIELS.

Low Level Radium content in water determined by α counting.

Health Physics. 9, n° 9, 927,930 - 1963.

O.R. FRICH.

The Nuclear Handbook.

G. Newnes limited. Tower house, Southampton street.

LONDON - 1958.

Madame FOURNIGUET, L. JEANMAIRE, H. JAMMET.

Dosage du Radium dans l'Urine.

Rapport C.E.A., n° 1228, 1959.

G. FRIEDLANDER et J.W. KENNEDY.

Chimie Nucléaire et Radiochimie.

Dunod. PARIS - 1960.

A. FRITCH, I. PINSET-HARSTROM, J. COURSAGET.

Etude sur la teneur en produits radioactifs des eaux et gaz des sources thermales de la Bourboule, du Mont Dore, et de Royat.

Rapport C.E.A., n° 876, 1957

M.P. GLANGEAUD.

Etude hydrologique sur les sources minérales de
ROYAT.

Annales de l'Institut d'Hydrologie et de Climatologie.
V, 123, 137 - 1927.

A.S. GOLDIN.

Determination of dissolved Radium.

Analytical chemistry, 33, n° 3, 406-409, 1961.

N.A. HALLDEN, I.M. FISENNE, J.H. HARLEY.

Radium²²⁶ in human diet and bone.

Science. 40, 1963.

F.B. HIGGINS, N. WERNER, W.M. GRUME, B.M. SMITH, J.G. TERRIL.

Methods for determining ²²²Rn and ²²⁶Ra.

J. Am. Water Work Assoc. 53-63, 1961.

J.E.R. HUDGENS, R.O. BENZING et coll.

Determination of Radium or Radon in gases, liquids
or solids.

Nucleonics, 9, n° 2, 14-21, 1951.

J.B. HURSH and A. LOVAAS.

The biliary excretion of Radium.

Health Physics. 6, n° 3, 183-188, 1961.

R.B. JACOBI.

The determination of Radon and Radium in water.

J. Chem. Soc. LONDON. Suppl. 314-318, 1949.

G. JURAIN.

Contribution à la connaissance des Familles de l'Uranium et du Thorium dans les Vosges méridionales. Application de certains résultats en prospection des gisements d'Uranium.

Thèse de Doctorat es Sciences. Faculté des Sciences de NANCY, 1962.

A. KAUL, H. MUTH.

Determination of Radium by Scintillation Spectrometry. IX th. International Congress of Radiology. B, Rajewsky Editors. 2, 1391-1396, 1961.

J.R.W. KERR, D.I. COOMBER and D.T. LEWIS.

The use of Bismuth radionuclides in analysis. Part II. The determination of Radon in waters. Analyst. 87, 944, 1962.

A. LEPAPE.

Analyse des eaux minérales de Royat. Annales de l'Institut d'Hydrologie et Climatologie. XII, n° 4, 1939.

A. LEPAPE.

Les données numériques actuelles sur la radioactivité des sources thermales Françaises. Annales de l'Institut d'Hydrologie et Climatologie. II, n° 1, 44, 1924.

Ch.W. MAYS, T.H. COCHRAN and W.S.S. SEE.

Radium and Radon retention in mice. Health Physics. 9, 615-619, 1963;

J. MEGY et A.M. RAMOS.

Etude d'un appareillage pour doser le Radon dans la respiration.

C.E.N. Saclay. Service des constructions Electroniques. Rapport 79.

L. MORET.

Précis de géologie.

Masson et Cie Editeurs - 1955.

H. PETTERSON.

Radium and the deep Sea.

Armer. Scientist. n° 41, 245-255, 1953.

E. PICCIOTO.

Utilisation des émulsions liquides dans l'étude
de la radioactivité des roches.

Bull. de la Soc. Belge de Géologie, de Paléontologie
et d'Hydrologie. LXV, n° 2, 1956.

H.G. RIECK and R.W. PERKINS.

Radium determination in soil, vegetation and water
by Radon counting.

Hanford Atomic products operation. General Electric
Corporation. Richland Wash - 1956.

M. ROUBAULT.

Irradiation naturelle par contamination radioactive.
Communication au colloque de Montpellier, 5, 7 Avril
1962.

"Irradiation naturelle et Irradiation artificielle
de l'homme". II, 451-458. Masson et cie Editeurs. 1962.

R.C. SCOTT and F.B. BARKER.

Radium and Uranium in ground water of United States.
Int. Con. Peaceful Uses Atomic Energy.
Geneva. 153-157, 1958.

R.C. TURNER, J.M. RADLEY and W.V. MAYNEORD.

Naturally occurring alpha activity of Drinkings
waters.

Nature. 189, 348-352, 1961.

M.A. VAN DILLA and D.M. TAYSUM.

Scintillation counter for assay of Radon Gas.
Nucleonics. 2, 12, 1955.

A. WALTON, R. KOLOGRIVOV and J.L. KULP.

The concentration and distribution of Radium in
the normal skeleton.
Health Physics. I, 409-416, 1959.

=====

TABLE DES MATIERES

<u>INTRODUCTION</u>	1
<u>PREMIERE PARTIE</u>	4
<u>Chapitre I</u>	5
<u>Famille du Radium</u>	
I - Les Eléments de la famille du Radium	5
II - Propriétés des Eléments	5
III - Descendants du Radon	9
IV - Equilibres Radioactifs	12
<u>Chapitre II</u>	20
<u>Analyse des méthodes de dosage du</u>	
<u>Radon et du Radium des Eaux</u>	
I - Généralités	20
II - Méthodes basées sur l'extraction du Radon, la mesure de son activité ou de celle de ses descendants	21
III - Méthodes basées sur l'isolement du Radium ou de l'un de ses descendants excepté le Radon	34
IV - Méthodes utilisant les techniques des émulsions nucléaires	36
V - Conclusions	37
<u>DEUXIEME PARTIE</u>	39
<u>Chapitre I</u>	43
<u>Application de la spectrométrie</u>	
<u>au dosage du Radon et du Radium des Eaux</u>	

I - Principes de la Spectrométrie γ	43
II - Spectre du rayonnement γ émis par un ou plusieurs radioéléments	47
III - Description de l'ensemble de mesure.	50
IV - Détermination des activités par Spectrométrie γ	53
 <u>Chapitre II</u>	67
<u>Etude des solutions étalons de Radium</u>	
I - Préparation des solutions	67
II - Mise en bonbonne des échantillons	68
III - Etude d'une solution étalon de Radium d'activité élevée .	70
IV - Etude de solutions étalons de Radium d'activités faibles .	76
 V - Conclusions générales à propos de la mesure des solu- tions étalons de Radium	78
VI - Mode opératoire proposé	80
 <u>Chapitre III</u>	82
<u>Application de la méthode à la mesure</u>	
<u>du Radon et du Radium des Eaux thermales</u>	
<u>de la station de ROYAT</u>	
I - Caractéristiques des eaux de Royat	82
II - Utilisation thérapeutique	83
III - Etude des eaux de la source EUGENIE	83
VI - Etude des eaux de la source SAINT-MART	88
V - Conclusions	90
 <u>CONCLUSIONS</u>	91
 <u>BIBLIOGRAPHIE</u>	95

Le Président de la Thèse :

Monsieur le Professeur M. BERGER

VU et permis d'imprimer
LYON, le 24 novembre 1964

Le Recteur, Président du
Conseil de l'Université,

VU, le Doyen :

P. LOUIS

J.F. CIER

